



Contribution aux traitements des incertitudes : application à la métrologie des nanoparticules en phase aérosol.

Loïc Coquelin

► To cite this version:

Loïc Coquelin. Contribution aux traitements des incertitudes : application à la métrologie des nanoparticules en phase aérosol.. Autre. Supélec, 2013. Français. NNT : 2013SUPL0017 . tel-01066760

HAL Id: tel-01066760

<https://theses.hal.science/tel-01066760>

Submitted on 22 Sep 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



N° d'ordre : 2013-17-TH

SUPELEC

ECOLE DOCTORALE STITS

« Sciences et Technologies de l'Information des Télécommunications et des Systèmes »

THÈSE DE DOCTORAT

DOMAINE : STIC

Spécialité : Traitement du Signal

Soutenue le 4 Octobre 2013

par :

Loïc COQUELIN

CONTRIBUTION AUX TRAITEMENTS DES INCERTITUDES : APPLICATION A LA METROLOGIE DES NANOPARTICULES EN PHASE AEROSOL

Directeur de thèse : Gilles FLEURY

Directeur de la Recherche et des Relations
Industrielles à SUPELEC

Composition du jury :

Président du jury : Jean-Yves TOURNERET

Rapporteurs : Cédric RICHARD

Evelyne GEHIN

Examineurs : Jérôme YON

François GENSDARMES

Nicolas FISCHER

Membres invités :

Tatiana MACE

Charles MOTZKUS

Professeur à l'ENSEEIH

Professeur à l'Université de Sophia-Antipolis

Professeur au CERTES - Université Paris-Est

Maître de conférences – INSA de Rouen

Responsable du LPMA à l'IRSN

Responsable du service Mathématiques et
statistiques au LNE

Responsable du département Qualité de l'Air et
Débitmétrie Gazeuse au LNE

Ingénieur-chercheur au département Qualité de
l'Air et Débitmétrie Gazeuse au LNE

Table des matières

1	Introduction générale	1
2	Modélisation du processus de mesure	9
2.1	État de l'art de l'instrumentation	9
2.1.1	Mesure de la distribution en diamètre aérodynamique	10
2.1.2	Mesure de la distribution en diamètre diffusionnel ou thermodynamique	14
2.1.3	Mesure de la distribution en diamètre de mobilité électrique	18
2.2	Modèle de réponse du SMPS	21
2.2.1	Modélisation de la loi de charges	22
2.2.2	Modélisation de la fonction de transfert du DMA	27
2.2.3	Le modèle pour l'expression de l'efficacité de détection du compteur	36
3	L'inversion de données	39
3.1	Introduction au problème mal posé	39
3.2	La régularisation	42
3.2.1	La méthode TSVD	42
3.2.2	La régularisation classique de <i>Tikhonov</i> [Tikhonov and Arsenin, 1977]	42
3.2.3	Le choix de l' <i>a priori</i>	43
3.2.4	Estimation du paramètre de régularisation	44
3.2.5	Cas du SMPS : limitations de la régularisation avec <i>a priori</i> homogène	48
3.3	Régularisation et décomposition sur une base d'ondelettes	51
3.3.1	Les ondelettes, la transformation et la synthèse du signal	51
3.3.2	Régularisation avec <i>a priori</i> de douceur sur chaque échelle	53
3.3.3	Estimation de multiples paramètres de régularisation	61
3.3.4	Comparaison numérique des estimateurs par régularisation classique et par la nouvelle procédure développée	69
4	Évaluation des incertitudes	73
4.1	Méthodologie générale	74
4.1.1	Définition des mesurandes	75
4.1.2	Regroupement des sources d'incertitude	77
4.1.3	Limitations de la méthodologie classique de propagation	78
4.1.4	Alternative pour la propagation des sources	79
4.2	Estimation de la granulométrie en nombre d'un aérosol par SMPS	79
4.2.1	Liste des sources d'incertitude	80
4.2.2	Analyse de sensibilité	81
4.2.3	Caractérisation expérimentale du débit d'air filtré et de la tension à l'électrode centrale du DMA	88
4.2.4	Modélisation de la dispersion expérimentale	92
4.2.5	Génération des fonctions noyaux aléatoires	96
4.2.6	Échantillonnage de Monte-Carlo pour la propagation des sources	102
4.2.7	Validation numérique de la propagation des incertitudes	103
4.2.8	Mise en œuvre sur des données réelles	104

5	Conclusion générale	109
6	Perspectives	113
A	Calcul de la valeur du champ électrique dans le cas non stationnaire	115
B	Calcul de la fonction de transfert de <i>Stolzenburg</i>	119

Liste des figures

1.1	Photo de la ville de Mexico prise à partir d'un avion DC-8 de la NASA au cours de l'expérience sur le terrain INTEX-B au printemps 2006 [Cli, 2009].	4
1.2	Quelques caractéristiques des aérosols atmosphériques : forme, taille et composition . .	5
1.3	Photo du SMPS modèle 3936 extraite du manuel d'utilisation de l'instrument.	6
2.1	Exemple illustrant la notion de diamètre équivalent.	9
2.2	Évolution de la fonction corrective de Cunningham C_c en fonction du diamètre x pour des valeurs de A , B , C [Kim et al., 2005].	11
2.3	Différence relative à la fonction corrective de Cunningham calculée par Kim <i>et al.</i> par rapport aux valeurs données par les auteurs du tableau 2.1.	12
2.4	Photo d'un impacteur en cascade (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite).	13
2.5	Photo d'un impacteur basse pression à détection électrique (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite).	14
2.6	Photo d'un Aerodynamic Particle Sizer 3321 (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite) extraits du manuel d'utilisation de l'instrument. .	15
2.7	Exemple de système de mesure utilisant une batterie de diffusion à grille et un CNC .	17
2.8	Photo d'un CNC modèle 3022A de la compagnie TSI (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite) extraite du manuel d'utilisation de l'instrument.	17
2.9	Mobilité électrique Z_d en fonction du diamètre x et du nombre de charges p pour $p = 1, 2, 3, 4, 5$	19
2.10	Photo d'un SMPS modèle 3936 (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite) extraite du manuel d'utilisation de l'instrument.	20
2.11	Évolution du temps de comptage T_c en fonction des diamètres géométriques x représentant chacun des canaux de mesure.	23
2.12	Fraction de charges $\phi(p = 1, x)$ en fonction du diamètre des particules x pour différentes propriétés ioniques définies dans le tableau 2.2.	26
2.13	Schéma simplifié de la colonne DMA.	30
2.14	Illustration des 4 trajectoires limites à l'intérieur de la colonne du DMA.	30
2.15	Fonction de transfert diffusive et non diffusive pour différentes valeurs du diamètre de mobilité électrique.	35
2.16	Efficacité de détection ν en fonction des diamètres x pour 3 modèles de CNC utilisés au LNE et à l'IRSN.	37
2.17	Effets de la composition de l'aérosol sur l'efficacité de détection des CNC 3010 et 3022 [Ankilov et al., 2002].	37
3.1	Critère de la courbe en L pour le problème de <i>Shaw</i>	47
3.2	Critère GCV pour le problème de <i>Shaw</i>	47
3.3	Critère de quasi-optimalité pour le problème de <i>Shaw</i>	48

3.4	Effets de la valeur du paramètre de régularisation λ dans l'estimation de f (augmentation d'un ordre de grandeur pour λ d'une figure à l'autre sachant que $\lambda = 10^{-16}$ sur la figure du haut) dans la procédure de régularisation classique pour un signal présentant des profils à variations lentes (2 bosses) et rapide (1 pic). Le signal initial est représenté en trait noir et les estimateurs pour différentes observations sont présentés en cyan.	50
3.5	Exemples de distributions granulométriques simulées.	55
3.6	Exemple de distribution simulée avec 1 pic et 2 bosses.	56
3.7	500 observations simulées (nombre de particules comptées en fonction du temps) associées à la distribution f de la figure 3.6.	57
3.8	500 estimations par méthode des moindres-carrés connaissant le jeu d'observations de la figure 3.7.	58
3.9	500 détails reconstruits au 1 ^{er} niveau à partir des estimations de la figure 3.8.	59
3.10	Exemple de fonction par morceaux $\lambda_{1,d}(x)$ et son lissage par le spline cubique pour une distribution présentant 2 pics.	59
3.11	Plan factoriel complet pour le pavage de l'espace à 2 dimensions (σ', A')	63
3.12	Distributions simulées selon le plan factoriel complet (figure 3.11).	64
3.13	Surface de réponse pour $\hat{\lambda}_{1,a}(\sigma', A')$ (interpolation linéaire entre les nœuds).	64
3.14	Surface de réponse pour $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A')$ (interpolation linéaire entre les nœuds).	65
3.15	Surface de réponse initiale pour $\hat{\lambda}_{1,a}(\sigma', A')$	66
3.16	Surface de réponse après lissage par la fonction <i>gridfit</i> pour $\hat{\lambda}_{1,a}(\sigma', A')$	66
3.17	Surface de réponse initiale pour $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A')$	67
3.18	Surface de réponse après lissage par la fonction <i>gridfit</i> pour $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A')$	67
3.19	Détermination des paramètres A' et σ' de la bosse conduisant aux pondérations les plus faibles à partir de l'estimation moyenne par moindres-carrés \hat{f}_{ms}	69
3.20	Schémas récapitulatifs de l'heuristique développée respectivement pour une seule observation (schéma du haut) et pour plusieurs observations (schéma du bas) en entrée du système.	70
3.21	Ensemble de distributions simulées avec 1 pic pour la comparaison entre la procédure de régularisation avec <i>a priori</i> homogène de douceur et la nouvelle procédure d'inversion.	71
3.22	Histogrammes des valeurs prises par le critère <u>MSE</u> : régularisation avec <i>a priori</i> homogène (figure de gauche) et nouvelle procédure (figure de droite) pour $N_q = 100$ distributions simulées et $N_r = 100$ observations générées pour chaque distribution.	71
3.23	Ensemble de distributions simulées avec 2 pics pour la comparaison entre la procédure de régularisation avec <i>a priori</i> homogène de douceur et la nouvelle procédure d'inversion.	72
3.24	Histogrammes des valeurs prises par le critère <u>MSE</u> : régularisation avec <i>a priori</i> homogène (figure de gauche) et nouvelle procédure (figure de droite) pour $N_q = 100$ distributions simulées et $N_r = 100$ observations générées pour chacune des distributions définies en figure 3.21.	72
4.1	Exemple d'aérosol stable : 40 mesures pour un aérosol à base d'huile (Di-Ethyl2-Hexil-Phtalate ou DEHP).	75
4.2	Exemple d'aérosol instable : mesures d'aérosols urbains avec prélèvement au 2 ^{ème} étage du site du LNE Paris en milieu d'après-midi.	76
4.3	Schéma illustrant la nécessité de distinguer 2 mesurandes.	76
4.4	Distribution analytique (figure de gauche) et la valeur moyenne des comptages associés en prenant la valeur nominale des paramètres du système (figure de droite).	82
4.5	Réponses simulées pour un plan de <i>Morris</i> à 21 paramètres, 5 niveaux par paramètre et 10 réplicats, pour un total de 210 simulations.	84
4.6	Temps d'apparition des pics (critères 3, 5 et 7) pour l'ensemble des simulations.	85
4.7	Valeur du comptage aux pics (critères 4, 6 et 8) pour l'ensemble des simulations.	85
4.8	Écart-type estimé des effets élémentaires en fonction de la moyenne estimée des effets élémentaires pour le critère numéro 1.	86

4.9	Écart-type estimé des effets élémentaires en fonction de la moyenne estimée des effets élémentaires pour le critère numéro 2.	86
4.10	Écart-type estimé des effets élémentaires en fonction de la moyenne estimée des effets élémentaires pour le critère numéro 7.	87
4.11	Écart-type estimé des effets élémentaires en fonction de la moyenne estimée des effets élémentaires pour le critère numéro 8.	87
4.12	Histogrammes du débit mesuré par débitmètre massique pour $Q_{sh} = 3$ lpm pour les 10 expériences.	89
4.13	Histogrammes du débit mesuré par débitmètre massique pour $Q_{sh} = 6$ lpm pour les 10 expériences.	89
4.14	Histogrammes du débit mesuré par débitmètre massique pour $Q_{sh} = 10$ lpm pour les 10 expériences.	90
4.15	10 Mesures de la tension à l'électrode centrale du DMA pour différents temps de scanning t_s (30 s, 60 s, 120 s, 180 s).	91
4.16	Valeurs de l'autocorrélation empirique pour chaque élément de la matrice Γ et les comptages mesurés pour un aérosol stable à base d'huile (DEHP) en premier plan.	94
4.17	Valeurs de l'autocorrélation empirique pour chaque élément de la matrice Γ et les comptages mesurés pour une suspension colloïdale de SiO_2 en premier plan.	94
4.18	500 Réalisations du processus \tilde{y} et observations réelles y pour l'exemple du DEHP.	95
4.19	500 Réalisations du processus \tilde{y} et observations réelles y pour l'exemple du SiO_2	95
4.20	Erreur relative à la fonction de correction de <i>Cunningham</i> calculée à partir des coefficients de Kim et <i>al.</i> pour 100 tirages du triplet de variables aléatoires (A, B, C)	97
4.21	Histogramme des échantillons des valeurs calculées pour t_f pour un million de simulations de Monte-Carlo pour la configuration standard où les valeurs nominales des débits sont données par $Q_{sh} = 3$ lpm et $Q_a = 0.3$ lpm.	98
4.22	Visualisation de la valeur des coefficients de la matrice d'autocorrélation $\Gamma_{1,\phi}$ calculée à partir des 10 valeurs du quadruplet pour $p = 1$ charge à partir desquelles plusieurs ϕ sont calculées et présentées en premier plan.	100
4.23	Visualisation de la valeur des coefficients de la matrice d'autocorrélation $\Gamma_{2,\phi}$ calculée à partir des 10 valeurs du quadruplet pour $p = 2$ charges à partir desquelles plusieurs ϕ sont calculées et présentées en premier plan.	100
4.24	Visualisation de la valeur des coefficients de la matrice d'autocorrélation $\Gamma_{3,\phi}$ calculée à partir des 10 valeurs du quadruplet pour $p = 3$ charges à partir desquelles plusieurs ϕ sont calculées et présentées en premier plan.	101
4.25	Quelques trajectoires des processus gaussiens modélisant l'incertitude sur la fonction ϕ pour $p = 1, 2, 3$ en fonction du diamètre des particules x et leurs régions de confiance à 95% associées (zones en gris clair). La fonction dite moyenne pour chaque charge est représentée en trait noir, elle correspond à la fonction obtenue en considérant le quadruplet de <i>Reischl</i>	101
4.26	Fonction de mélange g pour 100 tirages de x^*	102
4.27	Schéma bloc simplifié de l'échantillonnage par Monte-Carlo pour la propagation de l'incertitude.	103
4.28	Estimateurs $\left(\hat{f}_1^{[s]}\right)_{s=1,\dots,N_s}$ (trait plein rouge) et $\left(\hat{f}_2^{[l,\tilde{s}]}\right)_{l=1,\dots,N_l}$ (trait plein bleu) et l'estimateur $\hat{f}_1^{[\tilde{s}]}$ (trait noir avec des points noirs).	105
4.29	Varianse empirique des estimateurs $\left(\hat{f}_1^{[s]}\right)_{s=1,\dots,N_s}$ et $\left(\hat{f}_2^{[l,\tilde{s}]}\right)_{l=1,\dots,N_l}$	105
4.30	1000 Trajectoires de Monte-Carlo pour le 1 ^{er} essai (figures du haut) et pour le 2 ^{ème} essai (figures du bas) avec prise en compte de la méconnaissance (figures de gauche) et sans prise en compte de la méconnaissance (figures de droite).	107
4.31	Estimateur moyen sur l'ensemble des simulations de Monte-Carlo et la région de confiance associée pour le 1 ^{er} essai (figures du haut) et pour le 2 ^{ème} essai (figures du bas) avec prise en compte de la méconnaissance (figures de gauche) et sans prise en compte de la méconnaissance (figures de droite).	107

A.1 Schéma simplifié de la colonne DMA	115
--	-----

Liste des tableaux

1.1	Estimation des émissions annuelles (Tg/an, où Tg représente un téragramme, sachant que $1 \text{ Tg} = 10^9 \text{ kg}$) des principaux types d'aérosols pour l'année 2000 (IPCC 2001) . .	3
2.1	Valeurs des coefficients de Cunningham A , B et C donnés par divers auteurs pour la correction de la loi de Stokes	12
2.2	Valeurs des propriétés ioniques utilisées dans la littérature par différents auteurs pour de l'air sec.	26
2.3	Valeur des coefficients $a_i(p)$ de l'équation (2.43) calculés par <i>Wiedensohler et al.</i> (1988).	27
3.1	Résultats numériques de la comparaison des ondelettes pour $N_q = 100$, $N_r = 500$ et $n_w = 1, 2, 3$	61
4.1	Liste des sources d'incertitude identifiées lors de la mesure d'un aérosol par technique SMPS et classement des sources dans les groupes modélisant respectivement la dispersion expérimentale et/ou la méconnaissance.	80
4.2	Liste des paramètres incertains du modèle physique et leurs plages de variations pour l'analyse de sensibilité.	83
4.3	Moyennes et écart-types mesurés par débitmètre massique pour les 3 configurations : $Q_{sh} = 3, 6, 10 \text{ lpm}$	88
4.4	Erreur relative à l'estimation originale de la tension minimale U_{min} pour divers temps de scanning t_s (30 s, 60 s, 120 s, 180 s).	91
4.5	Erreur relative à l'estimation originale de la tension maximale U_{max} pour divers temps de scanning t_s (30 s, 60 s, 120 s, 180 s).	91
4.6	Valeurs nominales des paramètres pour la mesure des 2 aérosols considérés. Les valeurs présentées sont fournies par le logiciel AIM pour chaque essai (tous les paramètres mis à disposition de l'expérimentateur pour chaque essai ne sont pas listés dans le tableau).	106

Liste des symboles

Le modèle physique

(A, B, C)	Facteurs de <i>Cunningham</i>
$\bar{\omega}_i(p, x)$	Fonction de transfert moyenne du DMA pour le canal i pour une particule de diamètre x portant p charges
η	Viscosité dynamique du gaz
η_0	Viscosité dynamique de référence du gaz à température ambiante T_0 et à la pression atmosphérique P_0
$\lambda_{m,0}$	Libre parcours moyen de référence des particules dans l'air à température ambiante T_0 et à la pression atmosphérique P_0
λ_m	Libre parcours moyen des particules
$\mathcal{K}(t, x)$	Fonction noyau spatio-temporelle représentant la physique du système de mesure
$\nu(x)$	Efficacité de détection du CNC pour une particule de diamètre x
$\omega(p, x, t)$	Fonction de transfert du DMA à l'instant t pour une particule de diamètre x portant p charges
$\phi(p, x)$	Fraction des particules de diamètre x portant p charges à la fin de la phase de neutralisation
C_c	Fonction de correction de <i>Cunningham</i>
D	Coefficient de diffusion des particules
f	Distribution granulométrique en nombre
$k_i(x)$	Fonction noyau spatio-temporelle discrétisée en temps
m_c	Nombre de canaux de mesure
p	Nombre de charges électriques
x	Diamètre de mobilité électrique des particules
$y(t)$	Réponse du CNC à l'instant t
$Y[i]$	Réponse du CNC dans le canal i moyennée pour le temps de comptage $T_c[i]$
Z	Mobilité électrique des particules
Z_d	Mobilité électrique exprimée en fonction du diamètre x des particules
Z_u	Mobilité électrique nominale d'extraction pour une tension U donnée

Les temps du système

τ_p	Temps de relaxation de la particule
t	Temps
$T[i]$	Temps d'arrivée de la première particule dans le canal i
$T_c[i]$	Temps de comptage dans le canal i
t_d	Temps de transport des particules entre la zone d'extraction du DMA et la chambre de détection du CNC
t_f	Temps de résidence des particules dans la colonne du DMA
t_r	Temps de retrace
t_s	Temps de scanning

Les tensions

$U(t)$	Tension à l'électrode centrale du DMA à l'instant t
U_{max}	Tension maximale à l'électrode centrale du DMA
U_{min}	Tension minimale à l'électrode centrale du DMA

Les débits

Q_a	Débit d'aérosol entrant dans la colonne du DMA
Q_{ex}	Débit en excès sortant de la colonne du DMA
Q_m	Débit d'aérosol mono-dispersé sortant de la colonne du DMA
Q_{sh}	Débit d'air filtré à l'intérieur de la colonne du DMA

Les paramètres géométriques du DMA

L	Longueur de la colonne du DMA
r_1	Rayon interne des électrodes de la colonne du DMA
r_2	Rayon externe des électrodes de la colonne du DMA

Les propriétés ioniques

α^\pm	Paramètre de <i>Fuchs</i> : probabilité de collision entre un ion positif ou négatif et la particule
β_p^\pm	Coefficient d'attachement des ions positifs ou négatifs avec une particule portant p charges
δ^\pm	Rayon de la sphère limite
λ^\pm	Libre parcours moyen des ions positifs ou négatifs
φ	Énergie potentielle électrostatique d'un ion quand il se déplace dans le champ électrostatique de la particule chargée
c_I^\pm	Concentration en ions positifs ou négatifs
c_p^\pm	Concentration en nombre des particules portant p charges élémentaires de signes positifs ou négatifs
D^\pm	Coefficient de diffusion des ions positifs ou négatifs

m_I^\pm	Masse des ions positifs ou négatifs
v_I^\pm	Vitesse thermique des ions positifs ou négatifs
Z_I^\pm	Mobilité électrique des ions positifs ou négatifs

Les températures et les pressions

P	Pression du gaz porteur
P_0	Pression de référence du gaz porteur
T	Température du gaz porteur
T_0	Température de référence du gaz porteur
T_a	Température absolue

Les constantes physiques

ϵ_0	Constante diélectrique du vide
e	Charge de l'électron
k_b	Constante de <i>Boltzmann</i>
P_e	Nombre de <i>Peclet</i>
R	Constante universelle des gaz
S	Constante de <i>Sutherland</i>
Stk	Nombre de <i>Stokes</i>

Les autres symboles

α_{el}	Coefficient d'élargissement de la fonction de transfert du DMA
α_{pen}	Coefficient de pénétration de la fonction de transfert du DMA
\bar{D}	Paramètre modélisant les effets de la diffusion brownienne
\bar{E}	Paramètre modélisant le mouvement électrostatique des particules en mouvement dans le DMA
\bar{v}	Vitesse moyenne du fluide dans l'ajutage
Γ	Fonction de courant des particules
γ_s	Tension de surface du fluide condensé
B	Mobilité mécanique des particules
ρ	Densité du fluide condensé
φ_ω	Fonction flux électrique des particules
ω	Fonction de courant du gaz porteur
\vec{E}	Vecteur champ électrique
\vec{F}_e	Force électrique
\vec{F}_i	Forces d'inertie
\vec{F}_t	Forces de traînée

\vec{F}_{int}	Force d'interaction entre ion et particule
\vec{v}_e	Vitesse de migration électrophorétique finale
$a_i(p)$	Coefficients du modèle pour l'expression de la loi de charges [Wiedensohler, 1988]
Kn	Le nombre de Knudsen
M	Masse moléculaire moyenne de l'air
M_s	Masse moléculaire du fluide condensé
P_p	Pression partielle
P_s	Tension de vapeur saturante
R_{sursat}	Degré de sursaturation
x_a	Diamètre aérodynamique des particules
x_{Kel}	Diamètre de <i>Kelvin</i>

Le modèle d'inversion

ϵ	Erreur de mesure
ϵ_h	Niveau de bruit sur les observations
ϵ_i	Erreur de mesure sur le canal i
Γ_ϵ	Matrice de variance/covariance des erreurs d'observations
γ_r	Paramètre de robustesse
$\hat{\Lambda}_{1,d}$	Estimateur de $\Lambda_{1,d}$
$\hat{\lambda}_{l_w,a}$	Estimateur de $\lambda_{l_w,a}$
$\hat{\lambda}_{l_w,d}$	Estimateur de $\lambda_{l_w,d}$
$\hat{\mu}, \hat{\sigma}, \hat{A}$	Estimateurs de la moyenne, de l'écart-type et de la constante d'échelle des distributions normales
$\hat{\mu}', \hat{\sigma}', \hat{A}'$	Estimateurs de la moyenne, de l'écart-type et de la constante d'échelle des distributions lognormales
\hat{f}	Estimateur de la granulométrie en nombre f
\hat{f}_λ	Estimateur de la granulométrie en nombre f par régularisation via le paramètre λ
\hat{f}_j	Estimateur de la granulométrie en nombre f au point $\log(x_j)$
\hat{f}_{ms}	Estimateur de la granulométrie en nombre au sens des moindres carrés pondérés
λ	Paramètre de régularisation
$\Lambda_{1,d}$	Vecteur des poids de régularisation associés au 1 ^{er} niveau de détail reconstruit
$\lambda_{l_w,a}$	Paramètre de régularisation associé à l'approximation reconstruite au niveau l_w
$\lambda_{l_w,d}$	Paramètre de régularisation associé au détail reconstruit au niveau l_w
$\{\phi_n\}_n, \{\psi_n\}_n$	Fonctions orthonormales singulières
$\{\sigma_n^2, \phi_n, \psi_n\}_n$	Système singulier de l'opérateur \mathcal{A}
$(\sigma_n)_{n \in N^*}$	Suite de valeurs singulières de l'opérateur \mathcal{A}

\mathcal{A}	Opérateur intégrable
\mathcal{A}^*	Opérateur intégrable adjoint de \mathcal{A}
\mathcal{A}^\dagger	Pseudo inverse de \mathcal{A}
$\mathcal{Im}(\mathcal{A})$	Image de l'opérateur intégrable \mathcal{A}
$\mathcal{Ker}(\mathcal{A})$	Noyau de l'opérateur intégrable \mathcal{A}
\mathcal{W}	Type d'ondelette
μ, σ, A	Moyenne, écart-type et constante d'échelle des distributions normales
μ', σ', A'	Moyenne, écart-type et constante d'échelle des distributions lognormales
ϕ_w	Fonction d'échelle associée à l'AMR
ψ_w	Ondelette mère
ϱ	Paramètre d'ajustement
$\ \mathcal{A}\ $	Norme de l'opérateur \mathcal{A}
$A_{j_w}^{[\mathcal{W}]}$	Approximation reconstruite au niveau j_w pour l'ondelette \mathcal{W}
$cA_{j_w}^{[\mathcal{W}]}$	Coefficients d'approximation au niveau j_w pour l'ondelette \mathcal{W}
$cD_{j_w}^{[\mathcal{W}]}$	Coefficients de détails au niveau j_w pour l'ondelette \mathcal{W}
D_2	Matrice d'approximation par différences finies de l'intégrale (équation (3.18))
$D_{j_w, ms}^{[\mathcal{W}]}$	Détails reconstruits de l'estimateur \hat{f}_{ms} au niveau j_w pour l'ondelette \mathcal{W}
$D_{j_w}^{[\mathcal{W}]}$	Détails reconstruits au niveau j_w pour l'ondelette \mathcal{W}
H	Matrice des noyaux correspondant à la discrétisation spatio-temporelle de l'opérateur intégral modélisant la réponse du SMPS
n_w	Niveau de décomposition
V_{j_w}	$j_w^{\text{ème}}$ sous-espace d'approximation
W_{j_w}	$j_w^{\text{ème}}$ sous-espace de détail
$y_i^{[r]}$	Observation sur le canal i correspondant au $r^{\text{ème}}$ réplicat de mesure
Trace	Opérateur trace

Abstract

This thesis aims to provide SMPS users with a methodology to compute uncertainties associated with the estimation of aerosol size distributions. SMPS selects and detects airborne particles with a Differential Mobility Analyser (DMA) and a Condensation Particle Counter (CPC), respectively. The on-line measurement provides particle counting over a large measuring range. Then, recovering aerosol size distribution from CPC measurements yields to consider an inverse problem under uncertainty.

A review of models to represent CPC measurements as a function of the aerosol size distribution is presented in the first chapter showing that competitive theories exist to model the physic involved in the measurement. It shows in the meantime the necessity of modelling parameters and other functions as uncertain. The physical model we established was first created to accurately represent the physic and second to be low time consuming. The first requirement is obvious as it characterizes the performance of the model. On the other hand, the time constraint is common to every large-scale problems for which an evaluation of the uncertainty is sought.

To perform the estimation of the size distribution, a new criterion that couples regularization techniques and decomposition on a wavelet basis is described. Regularization is largely used to solve ill-posed problems. The regularized solution is computed as a trade-off between fidelity to the data and prior on the solution to be rebuilt, the trade-off being represented by a scalar known as the regularization parameter. Nevertheless, when dealing with size distributions showing broad and sharp profiles, an homogeneous prior is no longer suitable. Main improvement of this work is brought when such situations occur. The multi-scale approach we propose for the definition of the new prior is an alternative that enables to adjust the weights of the regularization on each scale of the signal. The method is tested against common regularization with homogeneous smoothness prior and shows improvements.

Last chapter of this thesis deals with the propagation of the uncertainty through the data inversion. Sources of uncertainty are gathered in two different groups, one called the experimental dispersion and the second being the lack of knowledge. Since there is no reference available to evaluate the bias on the final estimate of the size distribution, the lack of knowledge is used here to characterize it. Unlike standard propagation that uses a fixed model for the inversion, we propose to use a random model drawn from random selection of elements of the second group.

The methodology is finally tested on real measurements of an aerosol made of SiO_2 droplets and of DEHP droplets (oil). It reveals that the main source of uncertainty arises from the lack of knowledge for the definition of the physical model. Indeed, SMPS measurements are repeatable under controlled laboratory conditions, making the experimental dispersion less influential in terms of the variance of the final estimate.

Résumé

Cette thèse a pour objectif de fournir aux utilisateurs de SMPS une méthodologie pour calculer les incertitudes associées à l'estimation de la granulométrie en nombre des aérosols. Le SMPS sélectionne et détecte respectivement les particules en suspension avec un analyseur de mobilité différentielle (DMA) et un compteur à noyaux de condensation (CNC). Le résultat de mesure est le comptage des particules de l'aérosol en fonction du temps. Estimer la granulométrie en nombre de l'aérosol à partir des mesures CNC revient à considérer un problème inverse sous incertitudes.

Une revue des modèles existants pour représenter les comptages CNC en fonction de la granulométrie en nombre de l'aérosol est présentée dans le premier chapitre de cette thèse et cette analyse bibliographique montre l'existence de théories concurrentielles pour modéliser la physique intervenant lors du processus de mesure. Dans le même temps, cette revue de littérature révèle la nécessité de considérer l'incertitude qu'elle soit paramétrique ou fonctionnelle.

Le modèle physique que nous proposons a été créé dans un premier temps pour représenter avec précision les phénomènes physiques intervenant lors de la mesure et, dans un second temps, de sorte que le temps requis pour un appel à ce modèle soit court. La première exigence est évidente car elle caractérise la fidélité du modèle à représenter les mesures réelles. D'autre part, la contrainte de temps est commune à tous les problèmes de grande dimension pour lesquels une évaluation de l'incertitude est demandée.

Pour effectuer l'estimation de la granulométrie en nombre, un nouveau critère qui couple les techniques de régularisation et de la décomposition sur une base d'ondelettes est décrit. La régularisation est largement utilisée pour résoudre des problèmes mal posés. La solution régularisée étant calculée comme un compromis entre la fidélité aux données et l'*a priori* sur la solution à reconstruire, le compromis étant représenté par un scalaire connu sous le nom de paramètre de régularisation. Néanmoins, lorsque la granulométrie à estimer présente à la fois des profils à variations lentes et des profils à variations rapides, un *a priori* homogène sur toute la gamme de reconstruction ne convient plus. La nouveauté des travaux présentés réside dans l'estimation de ce type de granulométries. L'approche multi-échelle que nous proposons pour la définition du nouveau critère de régularisation est une alternative qui permet d'ajuster les poids de la régularisation sur chaque échelle du signal. La méthode développée est comparée avec une régularisation classique avec un *a priori* homogène de douceur. Les résultats montrent que les estimations proposées par la méthode décrite dans ce manuscrit sont meilleures que les estimations classiques, aussi bien en termes de variance que de biais.

Le dernier chapitre de cette thèse traite de la propagation de l'incertitude à travers le modèle d'inversion des données. Les sources d'incertitude sont réunies en deux groupes différents, l'un appelé la dispersion expérimentale et le second nommé le manque de connaissances. Ne disposant d'aucun aérosol de référence à ce jour, le second groupe d'incertitudes sera utilisé pour le caractériser. Contrairement à l'approche standard qui utilise un modèle fixe pour l'inversion en faisant porter toute l'incertitude sur les entrées, nous proposons d'utiliser un modèle d'inversion aléatoire obtenu par tirage aléatoire des éléments du second groupe. Les simulations de Monte-Carlo permettent alors de déduire une estimation moyenne de la granulométrie en nombre de l'aérosol à l'étude.

La méthodologie est finalement éprouvée sur des mesures réelles d'aérosols constitués de gouttelettes de SiO_2 et de DEHP (huile). Les résultats révèlent que la principale source d'incertitude provient du manque de connaissance pour la définition du modèle physique. En effet, les mesures SMPS sont reproductibles en conditions contrôlées de laboratoire, ce qui rend la dispersion expérimentale moins influente sur la variance de l'estimation finale.

Remerciements

Voilà une partie qui plutôt que de privilégier le raisonnement va faire place à la spontanéité, le naturel. Et oui sur ces 2 pages dédiées, je suis sensé remercier toutes les personnes qui ont contribué au bon déroulement de cette thèse. Tout ça en seulement 2 pages, autant dire raconter une histoire en oubliant la description des personnages et leurs particularités. Alors vite il faut commencer en tâchant de n'oublier personne ! Et oui forcément comme pour tout clin d'œil il faut éviter les oublis, du coup après 3 cafés me voila prêt à faire ma liste.

Tout d'abord, je tiens à remercier les acteurs du projet au LNE, à l'IRSN et à SUPELEC que sont Nicolas Fischer, Charles Motzkus, Tatiana Mace, François Gensdarmes, Laurent Le Brusquet et enfin Gilles Fleury mon directeur de thèse. Je tiens à tirer un grand coup de chapeau à cette équipe et à sa faculté à m'encadrer au cours de ce projet car comme tout bleu qui se respecte, il m'a fallu du soutien, de la considération et un bon coup de pied au cul de temps à autre pour apprendre le métier.

Je tiens aussi à souligner l'accueil qui m'a été réservé dans chacun des laboratoires dans lesquels j'ai été amené à travailler, que ce soit à Saclay sur le site de l'IRSN, à Gif-sur-Yvette sur le campus de SUPELEC ou encore au LNE sur les sites de Trappes et de Paris. A toutes ces personnes fréquentées pendant un laps de temps plus ou moins long, le temps d'une expérience ou d'une discussion, un grand merci.

Parmi mes encadrants, une pensée toute particulière à Nicolas, un responsable attachant et à l'écoute ainsi qu'à Laurent, un encadrant hors-pair, à la fois patient et pédagogue dont l'absence lors de ma soutenance m'a beaucoup peiné. J'espère que nos échanges perdureront au-delà de ces travaux de thèse car ils se sont toujours avérés très enrichissants.

Au sein du service mathématiques et statistiques du LNE sur le site de Trappes, je souhaite remercier tout particulièrement Géraldine et Séverine avec qui j'ai tissé de réels liens d'amitié. Je n'oublierai pas les blagues salaces de bon matin lors du rituel du café de 9h et votre bonne humeur au quotidien. Une petite pensée d'ailleurs à Géraldine qui attend un 4^{ème} et dernier heureux événement dans quelques mois. Je n'oublie pas le reste de l'équipe formée par Catherine, Alexandre et Pascal ainsi que l'équipe de la DRTI formée de Gilles, Alain et Jean-Christophe avec qui nous déjeunons chaque midi. Entre discussions futiles et grands débats philosophiques, les pauses au laboratoire ont toujours été des instants d'échange que j'ai beaucoup apprécié au cours de ces trois années.

Le travail de chercheur ne se résumant cependant pas à la vie du laboratoire, ma famille et mes proches ont une part bien méritée dans ce déballage de sentiments. Et oui c'est bien à l'ensemble de ma famille depuis le début de ma thèse que je dois le surnom de Mr Nanoparticules. Je garde en mémoire ces moments mémorables où avec détermination j'ai tenté de justifier la nécessité de mes travaux. En vain bien sûr mais au final convaincu de la fierté et de l'estime dans vos yeux et cela n'a pas de prix. Pour ces raisons, je dédie cette thèse à mes parents, à mon frère aîné et au restant de ma famille que je vois d'ors-et-déjà levée la main au fond de la salle.

Mais voilà que les remerciements se poursuivent et que la place s'amenuise sans que j'ai pris le temps

de faire étal des joies partagées avec mes amis. Commençons par les bordelais : Vincent alias B20, l'anticonformiste et révolutionnaire naissant (attention à toi au passage), Amine le sage et confident tout jeune papa d'Adam et enfin Momo le généreux, ces amis d'enfance qui m'ont suivis jusqu'à aujourd'hui dans mes péripéties.

Enchaînons maintenant avec les parisiens : Vincent mon cher bobo capitaliste avec qui j'adore échanger et mascotte du groupe des 4(+1) fantastiques, brillant parfois, hilarant le plus souvent, Loïc Le Blond, l'intello au grand coeur toujours partant pour une bonne soirée arrosée, Ugo le surfeur, dernier sosie en activité de Guillaume Canet, tout récemment papa de la petite Constance et enfin Rémi le tradeur en devenir, le juste, toujours partant pour une guéguerre avec Kiki. A ces fantastiques, il faut associer leurs compagnes Aude, Maude et Gaelle qui sont venues étoffer ce groupe de joyeux lurons.

En parlant de compagnes me voici arrivé au dernier paragraphe de cette partie des remerciements et le meilleur étant pour la fin je tiens à te la réserver. Et oui je n'allais pas occulter celle qui partage ma vie, Aurélie, la belle rencontre faite au cours de cette thèse. Tu as enduré mes humeurs, mes nuits blanches, mes poches sous les yeux et tu as été forte au quotidien, une vraie bouffée d'oxygène quand l'air au bureau semblait pestilentiel ou que le problème scientifique rencontré semblait outrepasser mes compétences. Pour toutes ces raisons, je te remercie.

Chapitre 1

Introduction générale

La compréhension des mécanismes de l'univers à différentes échelles de la matière a toujours été l'essence des travaux de la communauté scientifique. Des galaxies aux particules élémentaires, le spectre est large, les questionnements fleurissent et l'objet de la réflexion entreprise touche l'infiniment petit, l'invisible à l'œil nu. Les prémices aux découvertes majeures ont souvent été l'observation de phénomènes inexplicables, moteur de la curiosité des chercheurs. Pourquoi la coupe de *Lycurgus*, coupe romaine en verre du IV^{ème} siècle après J.C, constituée de particules d'or et d'argent d'une taille avoisinant les 50 nm, est elle verte quand éclairée de face et rouge de dos. Une telle question peut sembler futile de prime abord mais les raisons de ce changement de couleur le sont moins.

Il a fallu patienter jusqu'à la fin du XIX^{ème} siècle et Michael Faraday [Faraday, 1857] pour entrevoir la réponse (les informations quand à la taille des particules n'étaient bien évidemment pas connue à l'époque antique) : lorsque les particules métalliques ont des dimensions inférieures à la longueur d'onde de l'onde électromagnétique qui les éclairent, ici la lumière visible, leurs couleurs dépend de leurs tailles. Les particules d'or et d'argent constituant le verre ont, dans ce cas précis, des caractéristiques dimensionnelles propres au groupe des nanoparticules. Elles seront au moyen-âge utilisées de façon empirique notamment pour lustrer les céramiques des établissements religieux.

Mais qu'est ce qu'une nanoparticule ? C'est une particule définie selon la norme ISO TS/27687 [Standard, 2008] comme un nano-objet dont les trois dimensions sont à l'échelle nanométrique (la définition du nanomètre est donnée par le Bureau International des Poids et Mesures (BIPM) en 1956). Donc contrairement à une idée reçue, les nanoparticules, ces assemblages d'un nombre réduit d'atomes, trouvent des applications qui ne sont pas toutes récentes. Toutefois, un homme a ouvert notre société actuelle à l'utilisation de cette technologie : Richard Feynman. Considéré comme l'un des physiciens les plus remarquables du XX^{ème} siècle, lors de son discours du 29 Décembre 1959 à la société américaine de physique, repris dans [Feynman, 1960] quelques mois plus tard, il se prit de la formule suivante : « Why cannot we write the entire 24 volumes of the Encyclopaedia Britannica on the head of a pin? ». Ce visionnaire, prix Nobel en 1965 en compagnie de Tomonaga et Schwinger pour leurs travaux dans le domaine de l'électrodynamique quantique, lança l'idée même des nanotechnologies qui font notre quotidien, au point que son influence sur les développements actuels dans ce domaine est l'objet de réflexion philosophique encore aujourd'hui [Toumey, 2008].

Mais encore une fois, qu'est ce que la nanotechnologie ? Selon l'ISO, la nanotechnologie est : « la science qui s'intéresse à la manipulation et au contrôle de la matière nanoscopique, ceci afin d'exploiter les propriétés particulières associées à sa taille et à sa structure. Les propriétés des nanomatériaux se distinguent de celles des atomes et des molécules isolées, de même que de celles des matériaux macroscopiques ». Gerd Binnig et Heinrich Rohrer, membres de l'équipe d'IBM à Zurich en 1981 facilitèrent le contrôle de la matière à cette échelle en inventant le microscope à effet tunnel

permettant de visualiser les structures nanométriques, découverte qui leur valut le prix Nobel en 1986 [Binnig and Rohrer, 1986]. Cette avancée technologique majeure a notamment permis à Iijima (NEC, Tsukuba, Japon) d'identifier dans un sous produit de synthèse des fullerènes, les désormais célèbres nanotubes de carbone [Iijima, 1991]. Les fullerènes, constituées de 60 atomes de carbone furent découverts par [Kroto et al., 1985]. Jusqu'à leur découverte, les seules formes cristallisées connues de carbone pur étaient le graphite et le diamant.

A présent, chercheurs et industriels se fascinent pour les nanotubes de carbone (prix Nobel pour le graphène en 2010, découvert en 2007 [Geim and MacDonald, 2007]) et l'étendue de leurs applications paraît illimitée (nano-inclusions dans les pneus pour modifier ses caractéristiques mécaniques, amélioration de la conductivité des batteries lithium-ion [Wu et al., 2003], renforcement du kevlar [Coleman et al., 2006], [O'Connor et al., 2009], etc.). Pour étayer cette remarque, il suffit de dire que c'est le matériau le plus résistant sur terre connu à ce jour, il est extrêmement élastique et c'est un meilleur conducteur électrique et thermique que le diamant. Néanmoins, n'est pas nano qui veut, la miniaturisation ne suffit pas. Par exemple, les micropuces ont une taille nanométrique (leur maîtrise atomique est assurée par lithographie à haute résolution), mais pour autant leurs propriétés ne diffèrent pas de celles observées à l'échelle macroscopique.

Notre intérêt se porte, dans le cadre de cette thèse, sur la nanométrie des particules en suspension dans l'air, couramment appelées aérosols. Les aérosols sont constitués de substances solides et/ou liquides dont la vitesse de chute est négligeable par rapport à la vitesse d'entraînement du gaz porteur. De quelques nanomètres à plusieurs micromètres, ils forment un ensemble très hétérogène (particules minérales, organiques, composées de matières vivantes comme les pollens, etc.). Naturels (poussières désertiques, sels marins, aérosols biogéniques, etc.) ou anthropiques (aérosols industriels, aérosols de combustion automobile, etc.), ils sont présents en grand nombre dans l'atmosphère. Les aérosols anthropiques compenseraient pour un tiers du réchauffement de la planète due aux gaz à effets de serre. Pour faire simple, ils bloquent l'arrivée des UV qui sont d'habitude piégés dans l'atmosphère par les gaz à effet de serre une fois renvoyé par la terre. C'est par conséquent un mécanisme de refroidissement.

La caractérisation des aérosols devient, et on le comprend assez aisément, une préoccupation scientifique majeure. L'appellation aérosols primaires est utilisée lorsque les particules sont émises directement dans l'atmosphère et le terme aérosols secondaires lorsque les particules émises résultent de réactions chimiques en phase gazeuse (oxydation par l'ozone par exemple) ou ionique. Le tableau 1.1 présenté dans un rapport de l'IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) en 2001 recense les émissions annuelles relatives aux principaux types d'aérosols pour l'année 2000. On apprend alors que 90 % des aérosols sont d'origine naturelle contre seulement 10 % produits par l'activité humaine ¹, les poussières désertiques et les sels marins représentant à eux seuls près de 97 % du total d'émissions naturelles aussi bien dans l'hémisphère nord que dans l'hémisphère sud. Il est à noter que les émissions de nature anthropique sont plus de 8 fois supérieures dans l'hémisphère nord en comparaison avec l'hémisphère sud en raison d'une activité industrielle bien plus conséquente occasionnant des rejets de plus grande ampleur. Une image de la ville de Mexico, située dans une cuvette entourée de montagnes, où s'ajoute souvent à la pollution atmosphérique d'origine anthropique des particules de combustion, parfois mélangées avec de la fumée faite de traînées de poudre et de poussières minérales provenant des régions avoisinantes est présentée en figure 1.1.

La pollution atmosphérique dans les zones urbaines n'est pas une nouveauté en soit, il suffit souvent pour un citadin de lever la tête pour s'en rendre compte. Néanmoins, la maîtrise des émissions d'aérosols de nature anthropique est devenue impérative pour les gouvernements. Pour preuve cet article de Brice Pedroletti dans le journal Le monde du 28 Janvier 2013 intitulé : «Chine : la pollution

¹Les chiffres réfèrent à une concentration massique, ceux-ci sont inversés lorsque l'on considère une concentration en nombre

Tableau 1.1: Estimation des émissions annuelles (Tg/an, où Tg représente un téragramme, sachant que 1 Tg = 10^9 kg) des principaux types d'aérosols pour l'année 2000 (IPCC 2001)

SOURCES	H.Nord	H.Sud	Global	Min-Max
AEROSOLS SECONDAIRES				
Sulfate				
issus de SO ₂ anthropique	106	15	122	69-214
issus des gaz biogéniques	25	32	57	28-118
issus de SO ₂ volcanique	14	7	21	9-48
Nitrate				
issus des NO _x anthropique	12.4	1.8	14.2	9.6-19.2
issus des NO _x biogéniques	2.2	1.7	3.9	1.9-7.6
Carbone organique				
issus des COV anthropique	0.15	0.45	0.6	0.3-1.8
issus des COV biogénique	8.2	7.4	16	8-40
AEROSOLS PRIMAIRES				
Matière organique				
Feux de biomasse	28	26	54	45-80
Combustion fossiles	28	0.4	28	10-30
Débris biogéniques	-	-	56	0-90
Carbone suie				
Feux de biomasse	2.9	2.7	5.7	5-9
Combustions fossiles	6.5	0.1	6.6	6-8
Poussières industrielles -	-	100	40-130	
Sels de mer	1440	1900	3340	2000-6000
Poussières désertiques	1800	349	2150	1000-3000
Total sources anthropiques	153	18	271	134-403
Total sources naturelles	3320	2326	5704	3097-9393

de l'air pousse Pékin à accepter plus de transparence». En effet, des taux records de présence de particules PM 2,5² à Pékin suscitent l'inquiétude des populations quant-aux risques sanitaires.

Mais pourquoi une telle méfiance à l'égard de ces particules fines? Pour commencer, il faut savoir que les particules fines sont principalement de nature anthropique alors que les particules de plus grandes tailles sont d'origine naturelle : les mécanismes de nucléation (homogène), de condensation (nucléation hétérogène) et de coagulation induisent la formation de particules dont le diamètre caractéristique varie de 1 à 100 nm environ, on utilise alors la dénomination mode de nucléation; la coagulation de particules initialement formées dans le mode de nucléation et le partitionnement gaz/particule forment des particules d'un diamètre variant cette fois de 100 nm à environ 2,5 μ m, le terme mode d'accumulation est choisi dans ce cas; les particules dont le diamètre caractéristique dépasse 2,5 μ m appartiennent au mode dit grossier et les éléments de ce groupe sont d'origine naturelle. La figure 1.2 extraite de [Brasseur et al., 2003] montre de manière générique que les particules d'aérosols ont une gamme de tailles, une gamme de formes, mais aussi comment la composition chimique diffère généralement parmi les gammes de taille et même parmi les particules individuelles dans une gamme de taille donnée. Les aérosols sont en définitive de natures très diverses : taille, surface, forme, structure cristalline, solubilité, concentration, composition chimique, etc.

Pour autant, doit-on craindre de s'exposer à ce type de polluants de l'atmosphère ? Le débat est lancé depuis quelques années suite à l'utilisation massive de produits manufacturés par la nanotechnologie. Selon [Roco, 2005], le marché mondial avoisinerait le trillion de dollars US en 2015. Comme pour toute innovation scientifique, les développements ont précédé les inquiétudes quant-aux risques pour la santé

²Particules dont la taille est inférieure à 2.5 μ m



Figure 1.1: Photo de la ville de Mexico prise à partir d'un avion DC-8 de la NASA au cours de l'expérience sur le terrain INTEX-B au printemps 2006 [Cli, 2009].

des personnes exposées. L'inhalation semble être la principale voie de contamination, cependant, les voies d'exposition sont nombreuses comme décrites dans la récente revue [Yah et al., 2012] : les pores de la peau, les tissus affaiblis, les secteurs olfactifs, respiratoires et intestinaux, ou encore par injection directe. Les particules ultra-fines (diamètre ≤ 100 nm) traversent toutes les barrières naturelles, ce qui est d'utilité en médecine tout particulièrement afin de délivrer des soins spécifiques par transport guidé de nanomatériaux [Sung et al., 2007], mais qui en même temps soulève des interrogations quand aux risques sanitaires encourus. Dans un rapport de l'Agence Nationale de Sécurité Sanitaire de l'Alimentation, de l'Environnement et du travail (ANSES) de 2006, il est préconisé de : «manipuler les nanoparticules avec la même prudence que les matières dangereuses, c'est-à-dire d'appliquer les procédures de sécurité sanitaire qui sont utilisées pour diminuer l'exposition aux matières dangereuses» et de caractériser les aérosols de particules fines par l'intermédiaire de leur distribution granulométrique en nombre (ou DGN qui est la concentration en nombre de particules en fonction de leurs diamètres).

Le terme nanométrie employé plus tôt commence à prendre tout son sens, car il s'agit pour caractériser cette grandeur fonctionnelle de la mesurer. Comme nous le verrons dans le premier chapitre de cette thèse, de nombreux instruments permettent aujourd'hui de réaliser cette mesure. Parmi les directions possibles, un instrument connaît une plus grande reconnaissance, si tant est que le critère de quantification de la reconnaissance soit le nombre d'études publiées pour lesquelles son utilisation est privilégiée. Cet instrument est le «Scanning Mobility Particle Sizer» (ou SMPS dont le modèle 3936, dernier modèle commercialisé par la société américaine TSI est présenté en figure 1.3). Aujourd'hui fleuron de l'instrumentation pour la mesure de la DGN, son développement repose sur la théorie de l'analyse différentielle de mobilité électrique, dont le principe est de faire migrer des particules aéroportées au travers d'un champ électrique induit par une différence de

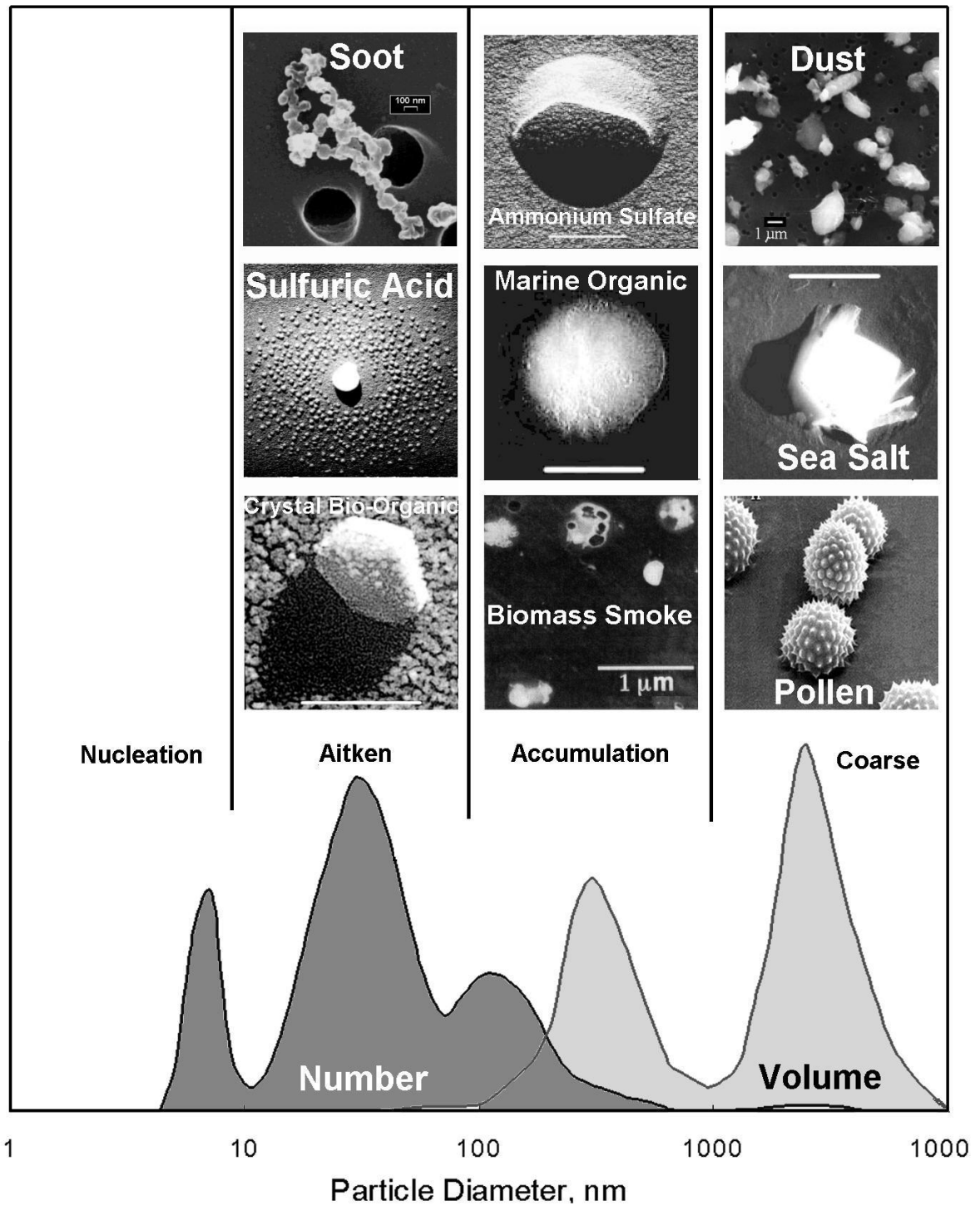


Figure 1.2: Quelques caractéristiques des aérosols atmosphériques : forme, taille et composition [Brasseur et al., 2003].

potentiel entre deux électrodes. Ainsi, pour une tension fixée, et donc une valeur du champ électrique donnée, un diamètre nominal de particule est extrait, d'où l'appellation classificateur électrostatique pour l'analyseur différentiel de mobilité électrique (ou DMA) inventé par Knutson et Whitby ([Knutson and Whitby, 1975b], [Knutson and Whitby, 1975a]). Couplé avec le développement des compteurs à noyaux de condensation (ou CNC) à flux continu [Agarwal and Sem, 1980] et un contrôle informatique automatisé [Fissan et al., 1983], le DMA devient un standard pour la détermination de la DGN dans la gamme 1 nm à 1 μ m. On parle alors de DMA opérant en «mode stepping» puisque



Figure 1.3: Photo du SMPS modèle 3936 extraite du manuel d'utilisation de l'instrument.

pour obtenir la DGN de l'aérosol à l'étude, il faut effectuer une discrétisation de la gamme de tension afin de définir le spectre du DMA (représentation de la concentration en nombre de particules en fonction du voltage appliqué) et une inversion de données permettant de déduire la DGN. L'inconvénient majeur étant alors le temps nécessaire à la mesure de la DGN complète. Conscient de cette limitation, [Wang and Flagan, 1990] proposèrent de considérer un champ électrique évoluant continûment en rampe exponentielle afin de pouvoir déterminer le spectre complet du DMA en un temps réduit (moins de 30 s). C'est donc à partir de ces développements et l'intégration de ce nouveau mode de fonctionnement dit «mode scanning» à l'intérieur du DMA que le terme SMPS a vu le jour.

Pour résumer, le dit SMPS est composé d'un DMA pour la sélection des diamètres de particules, d'un CNC placé en aval pour le dénombrement et d'une gestion informatique permettant le post-traitement des données CNC (concentration en nombre de particules en fonction du voltage ou du temps). Partant de résultats expérimentaux, le post-traitement requiert d'une part la création d'une modélisation fine du processus de mesure et d'autre part la mise en place d'une procédure d'inversion robuste. Un exemple d'inversion courant en imagerie consiste à reconstituer une image originale à partir d'une version floutée de celle-ci. Le terme inversion traduit le fait que si le phénomène entraînant la perturbation est parfaitement connu, appliquer une perturbation inverse permet une reconstruction parfaite de la version originale.

La difficulté première provient ici de la complexité du modèle physique en présence rendant la modélisation mathématique difficile. Si l'on suit la doctrine de Laplace du déterminisme universel traduit par la célèbre phrase : «Une intelligence qui pour un instant donné connaîtrait toutes les forces dont la nature est animée et la situation respective des êtres qui la composent, si d'ailleurs elle était assez vaste pour soumettre ces données à l'analyse, embrasserait dans la même formule les mouvements des plus grands corps de l'univers et ceux du plus léger atome; rien ne serait incertain pour elle et l'avenir comme le passé serait présent à ses yeux.», tentant de caractériser un aérosol en réalisant 100 mesures, on devrait théoriquement obtenir 100 mesures identiques si le mesurande ne change pas d'une mesure à l'autre. Ce point de vue déterministe a toutefois été balayé par Heisenberg au printemps 1927 [Heisenberg, 1927] et le principe d'indétermination ou principe d'incertitude. La vulgarisation de ce principe revient à dire qu'il est impossible de connaître à la fois la position et la quantité de mouvement d'un objet de manière certaine. La mesure de la DGN d'un aérosol par un SMPS est ici soumise à diverses sources d'incertitude, de natures variées et en grand nombre.

La seconde problématique faisant l’objet de cette thèse est donc l’estimation de la DGN sous incertitudes. Résoudre ce problème revient à développer une procédure d’inversion intégrant des signaux d’entrée (observations) incertains. Assimilée à une propagation d’erreur à travers la représentation mathématique d’un phénomène physique, la propagation d’incertitude consiste à traduire, sous hypothèses, comment les erreurs de mesure et les erreurs de modélisation affectent l’estimation de la DGN dans l’espace des sorties. Le guide pour l’expression de l’incertitude de mesure (GUM [JCGM, 1995]) ne permet guère de répondre à cette problématique. En effet, le mesurande n’étant ni scalaire, ni vectoriel mais bien fonctionnel, il est par nature exclu du champ d’application de ce guide. A ce jour, à notre connaissance, aucun laboratoire national de métrologie ne peut fournir une incertitude associée à la DGN, et ce, bien que le besoin industriel dans ce domaine soit manifeste (utilisation dans les lieux de travail, nanomatériaux, etc.). Le LNE (Laboratoire National de Métrologie et d’Essais), l’IRSN (Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire), et SUPELEC, membres actifs du groupe «Incertitudes et Industrie» de l’Institut de Maîtrise des Risques développent des collaborations et des travaux scientifiques entre industriels et académiques afin de répondre à ce type de problématique. La démarche scientifique entreprise consiste à associer à chaque mesure SMPS une incertitude par une méthodologie adaptée. Si l’on doit récapituler les divers problématiques exposées jusqu’alors, elles s’articulent selon 3 axes.

Le premier axe faisant l’objet du premier chapitre décrit tout d’abord le protocole de mesure, suivi de sa modélisation. Un état de l’art des modèles possibles est présenté. Il conduit à la sélection d’un modèle au plus près de la physique et ce choix se justifie à la fois par une connaissance approfondie de la mesure et par l’expertise des chercheurs dans le domaine d’application moyennant des contraintes liées au temps de calcul. Les limitations associées au temps de calcul sont légitimes dans le cadre de la propagation de l’incertitude à travers un code numérique complexe et cette étude ne passe pas outre cet aspect.

L’estimation de la DGN fait, comme énoncé précédemment, intervenir une inversion des données du CNC. Proposer une méthode d’inversion adaptée à la mesure par SMPS d’un aérosol donné, et donc adaptée à un certain type de signaux d’entrée, encore une fois spécifique à l’application est l’objectif du deuxième chapitre de cette thèse.

Avant de se focaliser sur la méthode proposée, l’idée est de comprendre pourquoi les techniques d’inversion présentes dans la littérature ne répondent pas convenablement, ou seulement partiellement à nos attentes en terme de reconstruction. Une vue d’ensemble des procédures d’inversion est alors exposée.

Le propos se tourne ensuite sur la technique mise au point qui suggère de coupler les méthodes de régularisation classiques avec une décomposition sur une base d’ondelettes discrètes. La résultante étant la mise au point d’un nouveau type d’*a priori* et donc la minimisation d’un nouveau critère. Apports et performances de la méthode sont évaluées sur différents cas tests pour justifier de son utilisation future.

A ce niveau de lecture, l’intérêt se porte sur les incertitudes d’une part liées au processus de mesure et d’autre part liées à l’inversion. Encore une fois, aucune méthodologie n’existe à ce jour pour évaluer l’incertitude correspondante à ce type de mesure, il s’agit donc de présenter une méthodologie innovante, générique et de s’assurer de sa validité. C’est exactement ce qui motive l’argumentation exposée dans la première partie du dernier chapitre de cette thèse. Quand les méthodes usuelles suggèrent de propager l’incertitude à modèle fixé, l’information relative aux modèles concurrents est prise en compte et une décomposition des sources par nature (erreurs de mesure/erreurs de modèles) assurent une propagation de l’incertitude facilitée par l’intermédiaire de simulations de Monte-Carlo. De plus, la méthodologie est en adéquation avec l’utilisation courante de l’instrument, par conséquent elle répond à un besoin d’applicabilité à court terme dans l’industrie et les laboratoires de recherche. Cette interlude généraliste est mise en œuvre par la suite sur le cas d’application, mise en œuvre qui requiert la discrimination des sources d’incertitude, la modélisation mathématique associée à chacune, pour finir par leur propagation. Les difficultés majeures rencontrées proviennent de la diversité quant-à la nature des sources et du système complexe à travers lequel celles-ci doivent être propagées. La

méthodologie présentée est finalement mise en œuvre sur des expériences réelles réalisées au laboratoire suivant le protocole de mesure décrit dans le premier chapitre ainsi que sur des observations simulées à partir de cas tests.

Chapitre 2

Modélisation du processus de mesure

2.1 État de l'art de l'instrumentation pour la mesure de la distribution granulométrique des aérosol ultra-fins

L'intérêt porté aux aérosols de particules fines et ultrafines depuis plus de 50 ans a engendré de nombreux développements en ce qui concerne l'instrumentation. La caractéristique dimensionnelle préférentielle du fait des corrélations mises en évidence entre taille des particules et problèmes de santé, est la concentration en nombre de particules : les particules ultra-fines interviennent de façon prépondérante dans l'expression de la concentration en nombre alors que leur masse est souvent négligeable et donc une caractérisation massique n'est pas adaptée. Une notion primordiale lorsqu'il s'agit de caractériser un aérosol est celle de diamètre équivalent (voir l'exemple sur la figure 2.1). La physique

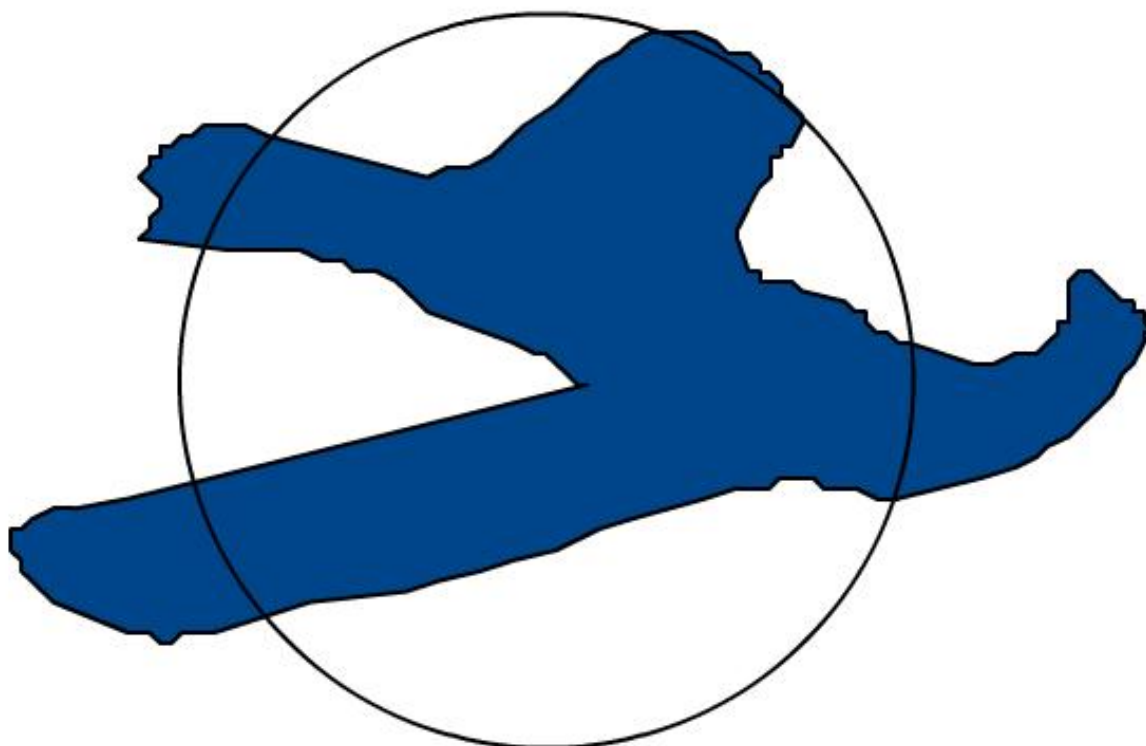


Figure 2.1: Exemple illustrant la notion de diamètre équivalent.

des aérosols est principalement établie en supposant que les particules ont une forme sphérique, cependant en réalité la morphologie des particules est très variée.

Pour la métrologie des aérosols, l'idée est de caractériser des diamètres de particules sphériques présentant certaines propriétés équivalentes (mobilité électrique, aérodynamique, thermodynamique, diffu-

sion de la lumière, etc.). La description d'une particule de forme quelconque se fait généralement par l'intermédiaire du diamètre équivalent qui permet de conserver la propriété la plus importante pour son usage ultérieur. Une comparaison est possible entre les différents diamètres équivalents par le biais d'autres caractéristiques des particules telles que la masse volumique, le facteur de forme, etc..

S'agissant de la mesure de la DGN, le principe de mesure se décompose communément en 2 phases : la phase de sélection des particules suivant une propriété et la phase de détection. Les paragraphes 2.1.1, 2.1.2 et 2.1.3 présentent l'instrumentation associée à l'estimation de la DGN pour une propriété donnée, respectivement le diamètre aérodynamique, le diamètre thermodynamique (ou diffusionnel) et le diamètre de mobilité électrique.

2.1.1 Mesure de la distribution en diamètre aérodynamique

L'objectif de la sélection des particules est la séparation particules/gaz porteur. Deux méthodes couramment utilisées (que l'on peut retrouver dans [Kleitzi and Boulaud,]) consistent en une variation du vecteur vitesse du fluide sur une échelle de temps inférieure au temps de relaxation des particules. La variation du vecteur vitesse du fluide peut alors se traduire en direction, et c'est le principe utilisé par l'impacteur en cascade ou en amplitude dans le cas de l'APS (Aerodynamic Particle Sizer) respectivement décrit en 2.1.1 et 2.1.1.

L'impacteur en cascade

Un impacteur en cascade est constitué, comme son nom le sous-entend, d'une série d'impacteurs, autrement dit d'une succession de plaques de collecte (ou d'impaction) entre lesquelles les flux d'air sont constamment accélérés par la réduction de la taille du nez d'impaction à l'étage suivant. L'aérosol passe à travers des buses dont la sortie est dirigée vers la plaque d'impaction correspondant à un étage donné. Le support dévie alors l'écoulement d'un angle de 90°, ainsi, si une particule n'est pas captée sur la première plaque d'impaction de par une trop faible inertie, celle-ci suit les lignes de courant et on tente alors de la collecter à l'étage suivant par le même principe. Ce procédé permet de bloquer les plus fines particules au dernier étage de collecte. La théorie de l'impaction inertielle en cascade est basée sur l'expression du nombre de *Stokes*, noté *Stk*, qui représente l'efficacité de collection pour le $j^{\text{ème}}$ étage et est donné par la formule suivante :

$$Stk = \frac{\tau_p \bar{v}}{r_j}, \quad (2.1)$$

où τ_p , \bar{v} et r_j représentent respectivement le temps de relaxation de la particule, la vitesse moyenne du fluide dans l'ajutage ¹ et le rayon de la $j^{\text{ème}}$ buse. L'expression pour le temps de relaxation de la particule τ_p est quand-à-elle fonction du diamètre aérodynamique ² x_a de la particule considérée, de la fonction correctrice de Cunningham C_c , de la viscosité dynamique du fluide η ainsi que de la masse volumique de référence ρ_0 par la relation :

$$\tau_p = \frac{\rho_0 x_a^2 C_c(x_a)}{18\eta}, \quad (2.2)$$

où C_c est défini comme suit :

$$C_c(x) = 1 + Kn(x) \left[A + B \exp\left(-\frac{C}{Kn(x)}\right) \right]. \quad (2.3)$$

La figure 2.2 montre l'évolution de la fonction correctrice de Cunningham en fonction du diamètre des particules. Plus les diamètres sont élevés et plus la fonction se rapproche de 1 car la loi de Stokes peut

¹Ajutage : Tuyau court qu'on adapte à un orifice d'écoulement pour en accroître ou en modifier le jeu

²Le diamètre aérodynamique x_a d'une particule est le diamètre de la sphère de densité 1 ayant la même vitesse de chute que la particule étudiée.

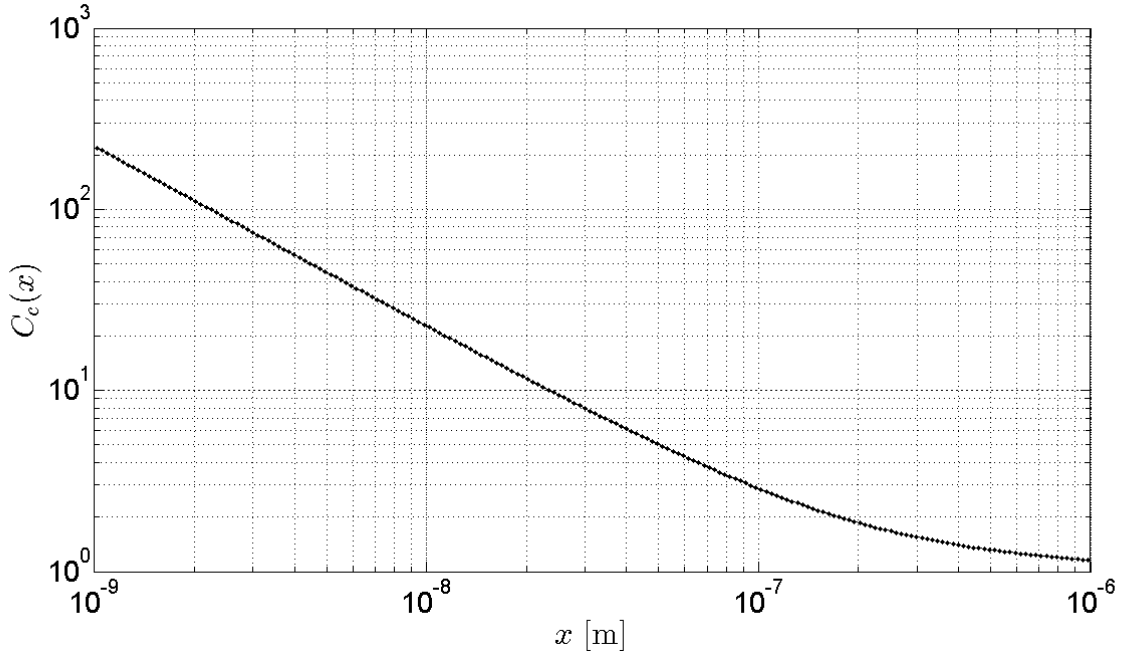


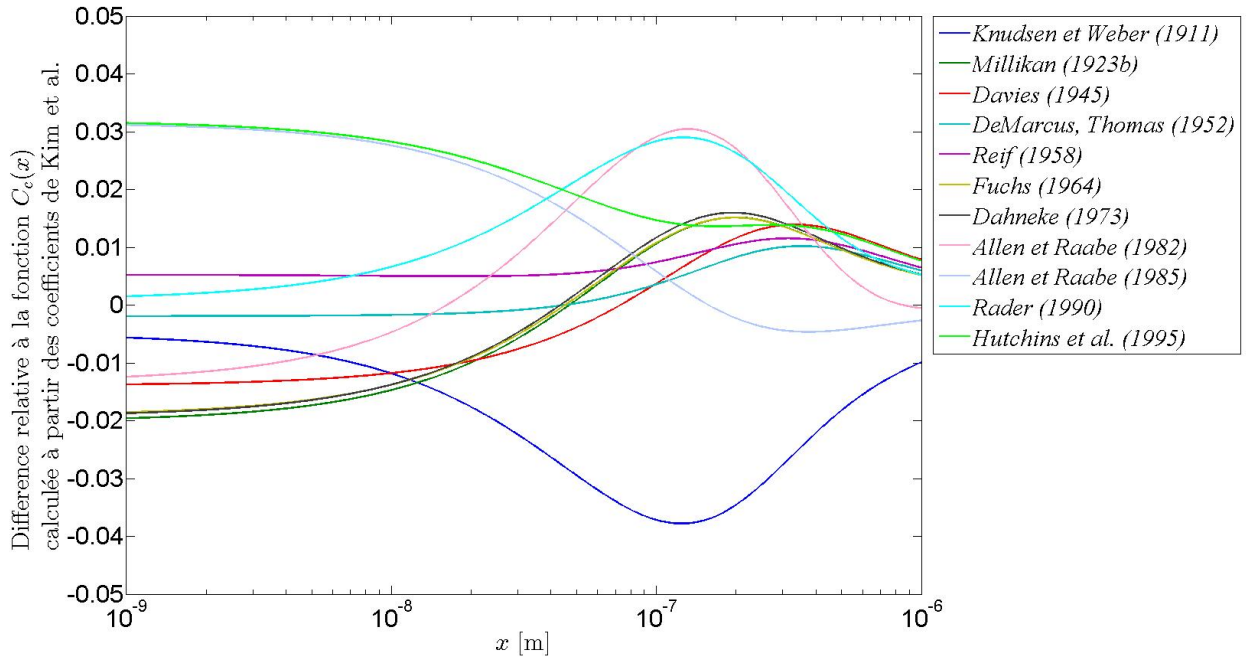
Figure 2.2: Évolution de la fonction corrective de Cunningham C_c en fonction du diamètre x pour des valeurs de A , B , C [Kim et al., 2005].

alors s'appliquer sans correction et inversement pour les faibles diamètres pour lesquels la correction est élevée. Le triplet (A, B, C) dans l'équation 2.3 correspond aux facteurs de Cunningham et Kn est le nombre de Knudsen sans dimension défini comme le quotient de deux fois le libre parcours moyen³ des molécules du gaz porteur sur le diamètre des particules : $Kn(x) = \frac{2\lambda_m}{x}$. Ce nombre caractérise la continuité du milieu, et, dans le domaine des aérosols, plusieurs ordres de grandeur sont scrutés ce qui engendre une modification du comportement moléculaire selon si $Kn \gg 1$ (domaine moléculaire), $Kn \ll 1$ (domaine continu) ou enfin $Kn \sim 1$ (domaine transitoire). La fonction C_c , dépendante du diamètre des particules, traduit donc la correction à appliquer par rapport au régime continu. Lorsque le diamètre des particules prend des valeurs proches du libre parcours moyen des molécules du fluide, alors les forces de frottement du gaz porteur à la surface des particules sont amoindries, ce qui entraîne une vitesse de chute plus importante que celle calculée par la loi de Stokes dans le cadre continu. La fonction corrective C_c est appliquée pour prendre en compte le fait que la loi de Stokes surestime les forces de frottement. Le tableau 2.1 présente les valeurs publiées pour les coefficients de correction de la loi de Stokes (A , B , C) ainsi que la valeur du libre parcours moyen λ_m associée aux expériences qui ont permis de les déterminer. La norme ISO 15900 [Standard, 2009] suggère de considérer les coefficients donnés par [Kim et al., 2005] car les expériences réalisées sont traçables au SI. Pour chaque ensemble de paramètres (A , B , C , λ_m) décrits dans le tableau 2.1, la fonction C_c est calculée et une comparaison avec la fonction corrective obtenue via les paramètres de Kim *et al.* est présentée sur la figure 2.3. Sur toute la gamme de diamètres, la différence relative à la fonction de correction de Kim n'excède pas 4 %. Une comparaison est toutefois difficile lorsque les libres parcours moyens des particules sont différents. En effet, les particules étudiées pour le calcul des paramètres étant de natures différentes, on se focalise souvent sur les expériences basées sur une valeur commune de λ_m , comme c'est le cas pour Kim *et al.*, Hutchins *et al.* et Allen et Raabe. Ainsi, les fonctions calculées respectivement à partir des paramètres d'Hutchins et d'Allen et Raabe servent de bornes à la fonction corrective définie par les coefficients de Kim. Reste à présent à définir l'expression de λ_m dans l'équation (2.3). Le calcul du libre parcours moyen λ_m des particules d'aérosol dans un gaz à la température T et pression P est effectué par correction du libre parcours moyen de référence $\lambda_{m,0}$ pour de l'air à température ambiante

³Le libre parcours moyen des molécules est la distance moyenne parcourue entre deux collisions inter-moléculaires

Tableau 2.1: Valeurs des coefficients de Cunningham A , B et C donnés par divers auteurs pour la correction de la loi de Stokes

Auteurs	λ_m [nm]	A	B	C
Knudsen et Weber (1911)	94.170	0.772	0.400	1.630
Millikan (1923b)	94.170	0.864	0.290	1.250
Davies (1945)	66.000	1.257	0.400	1.100
DeMarcus, Thomas (1952)	65.500	1.250	0.440	1.090
Reif (1958)	65.200	1.260	0.450	1.080
Fuchs (1964)	65.300	1.246	0.420	0.870
Dahneke (1973)	66.000	1.234	0.414	0.870
Allen et Raabe (1982)	67.300	1.155	0.471	0.596
Allen et Raabe (1985)	67.300	1.142	0.558	0.999
Rader (1990)	67.400	1.207	0.440	0.780
Hutchins <i>et al.</i> (1995)	67.300	1.231	0.4695	1.1783
Kim <i>et al.</i> (2005)	67.300	1.165	0.483	0.997

Figure 2.3: Différence relative à la fonction corrective de Cunningham calculée par Kim *et al.* par rapport aux valeurs données par les auteurs du tableau 2.1.

T_0 et à la pression atmosphérique P_0 :

$$\begin{aligned}
 \lambda_m &= \lambda_{m,0} \times \left(\frac{T}{T_0}\right)^2 \times \left(\frac{P_0}{P}\right) \times \left(\frac{T_0 + S}{T + S}\right), \\
 \lambda_{m,0} &= 67.3 \times 10^{-9} \text{ m}, \\
 P_0 &= 101.3 \text{ kPa}, \\
 T_0 &= 296.15 \text{ K}, \\
 S &= 110.4 \text{ K}.
 \end{aligned} \tag{2.4}$$

2.1 État de l'art de l'instrumentation

La viscosité dynamique η est calculée de façon similaire à partir de η_0 et T_0 :

$$\begin{aligned}\eta &= \eta_0 \times \left(\frac{T}{T_0}\right)^{3/2} \times \left(\frac{T_0 + S}{T + S}\right), \\ \eta_0 &= 1.83245 \times 10^{-5} \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\end{aligned}\tag{2.5}$$

Finalement, la mesure de l'aérosol qui est effectuée par ce type d'instrument est une mesure massique : la quantité de particules déposées sur chaque plaque de collecte, correspondant à chaque étage de l'impacteur en cascade, est pesée. Le résultat s'exprime alors comme une valeur moyenne pour un temps de prélèvement donné. Une relation entre distribution massique et distribution en nombre permet, moyennant certaines hypothèses, d'obtenir une estimation de la DGN. La figure 2.4 présente un impacteur en cascade et le schéma explicatif du fonctionnement du dispositif.

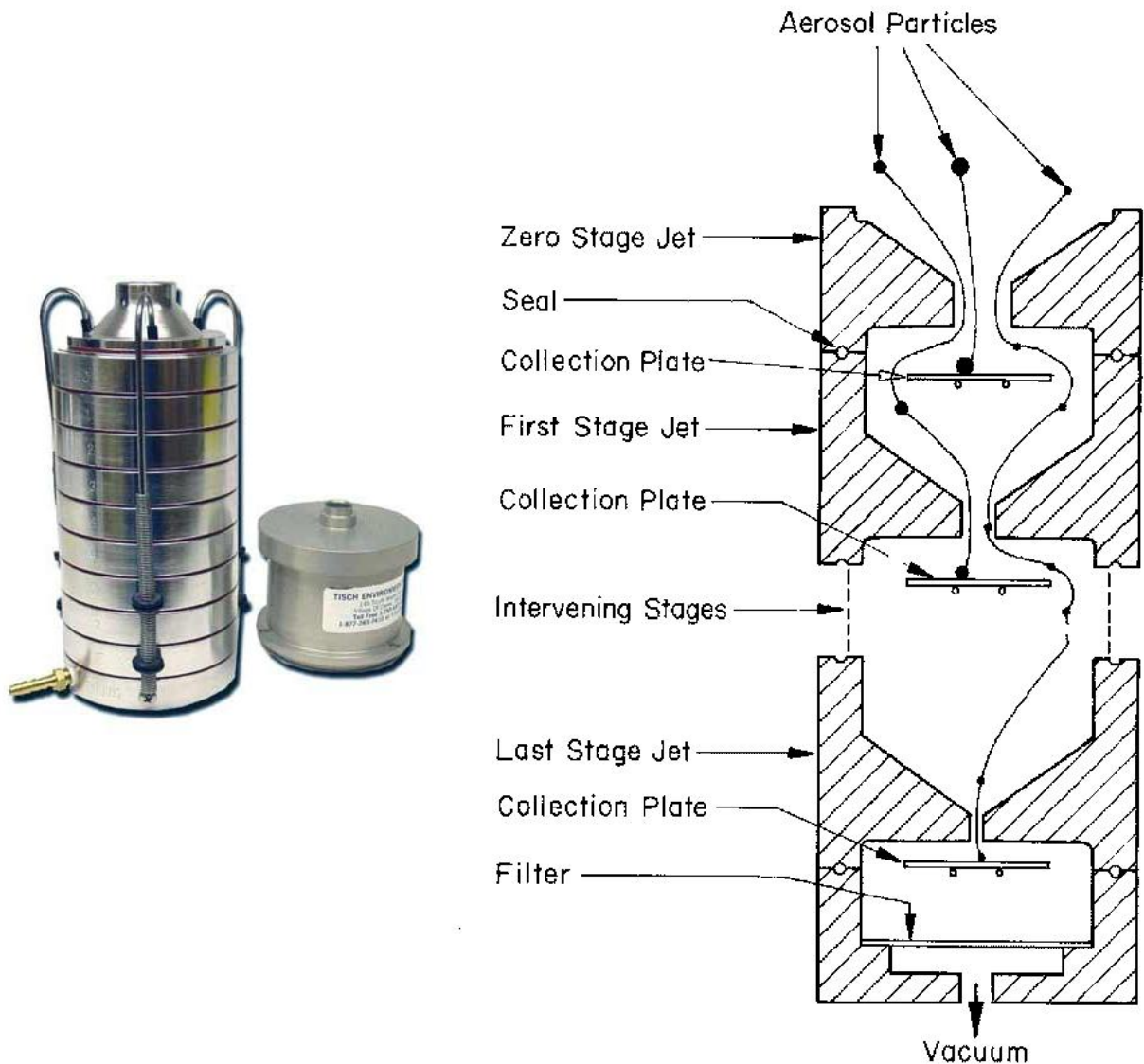


Figure 2.4: Photo d'un impacteur en cascade (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite).

L' impacteur basse pression à détection électrique

L'impacteur basse pression à détection électrique (ou ELPI) décrit en 1992 par [Keskinen et al., 1992] est une association d'instruments construite à partir d'un impacteur en cascade comme défini en 2.1.1

auquel on vient ajouter un chargeur en amont et des électromètres à chaque étage d'impaction afin de pouvoir dénombrer en temps réel les particules collectées. Le chargeur de particules est dans ce cas une tête à effet couronne. La figure 2.5 présente l'ELPI et le schéma de fonctionnement associé.

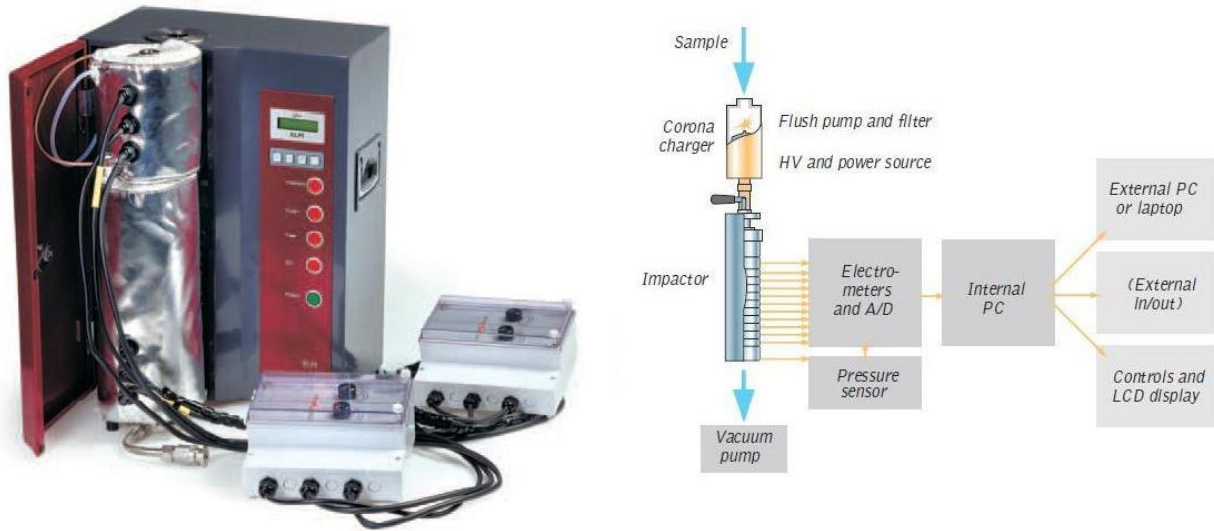


Figure 2.5: Photo d'un impacteur basse pression à détection électrique (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite).

L' Aerodynamic Particle Sizer

L' Aerodynamic Particle Sizer (ou APS), dispositif de mesure crée par [Agarwal and Fingerson, 1979] propose une nouvelle méthode pour dissocier les particules du fluide. L'aérosol passe à travers un orifice très étroit et donc sa vitesse augmente considérablement, on parle alors d'orifice d'accélération. Au cours de l'accélération du fluide porteur, les particules ajustent leur vitesse à celle du fluide, toutefois, un retard d'ajustement opère. Ce retard est fonction du temps de relaxation et donc du diamètre aérodynamique de la particule. En sortie de buse, la vitesse de chaque particule est calculée par l'intermédiaire d'un faisceau laser dédoublé. Lors du passage à travers les faisceaux, les particules diffusent la lumière et un miroir elliptique, placé à 90° de l'axe des lasers collecte la lumière et la focalise sur un photo-détecteur en avalanche. Les impulsions lumineuses sont alors converties en signaux électriques. Pour chaque particule, le temps de vol est estimé à partir du signal électrique présentant deux pics (un pour chaque faisceau laser) comme l'intervalle de temps entre ces deux pics. Pour les APS les plus récents, la résolution temporelle pour l'estimation du temps de vol est de 4 ns ce qui assure une estimation précise du diamètre aérodynamique des particules à partir de ce temps de vol. La figure 2.6 présente le modèle APS 3321 de la société TSI et son schéma fonctionnel.

2.1.2 Mesure de la distribution en diamètre diffusionnel ou thermodynamique

Le mouvement des très petites particules dans un fluide est erratique, aléatoire et est communément appelé mouvement brownien. Mis en évidence par le botaniste *Brown* en 1857, et formulé mathématiquement par Einstein en 1905 qui décrit ce phénomène comme initié par les impulsions transmises à la particule par les molécules du fluide soumises à l'agitation thermique, le déplacement brownien des particules s'effectue des zones de fortes concentrations aux zones de faibles concentrations (diffusion particulaire). La diffusion est régie par la première loi de *Fick* qui traduit le fait que le flux de particules J à travers une surface est proportionnel au gradient de la concentration en nombre ∇c

2.1 État de l'art de l'instrumentation

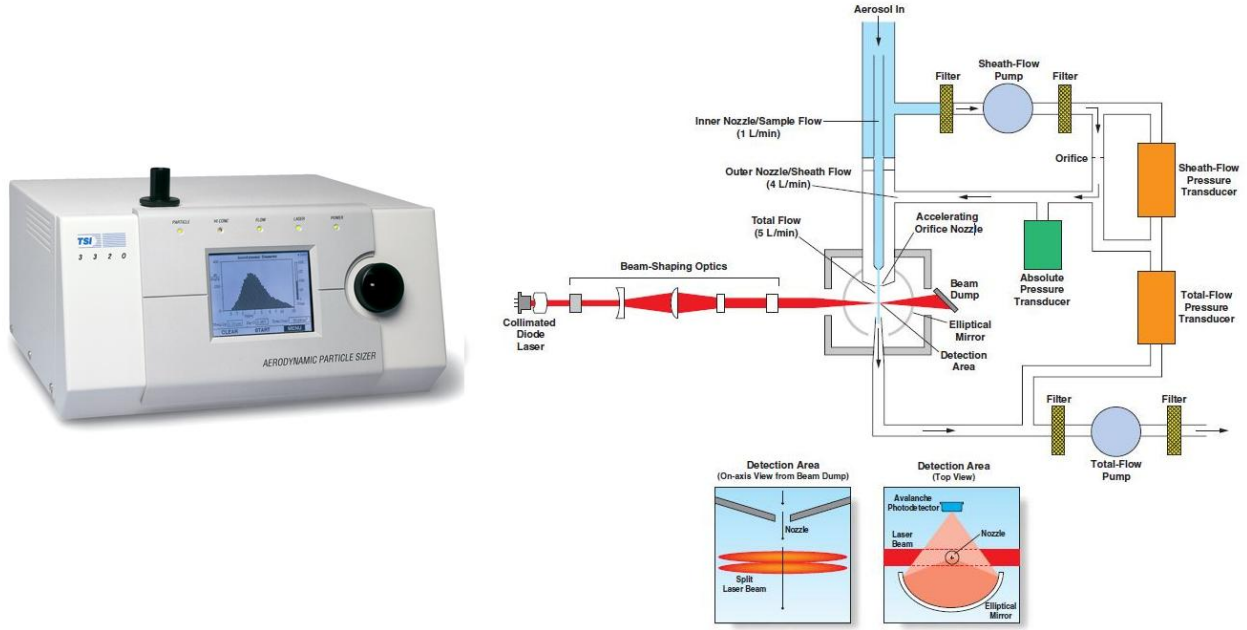


Figure 2.6: Photo d'un Aerodynamic Particle Sizer 3321 (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite) extraits du manuel d'utilisation de l'instrument.

:

$$J = -D\nabla c, \quad (2.6)$$

où D est le coefficient de diffusion de la particule de diamètre x , dont l'expression est liée à la constante de Boltzmann k_b , à la température du gaz porteur T , à la viscosité dynamique du gaz η et enfin à la fonction de correction de Cunningham C_c :

$$D = \frac{k_b T C_c(x)}{3\pi\eta x}. \quad (2.7)$$

A température constante, plus les particules sont petites et plus leur coefficient de diffusion est élevé, ce qui entraîne une plus grande mise en agitation sous l'action du mouvement brownien. La seconde loi de Fick traduit l'évolution temporelle de la concentration en nombre $\frac{\partial c}{\partial t}$ pour un gaz stationnaire :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla(D\nabla c). \quad (2.8)$$

En considérant un gradient non nul dans la seule direction axiale z , une solution de l'équation (2.8) s'écrit :

$$c(z, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi Dt}} \exp\left(-\frac{z^2}{4Dt}\right), \quad (2.9)$$

qui n'est autre qu'une gaussienne dont l'écart-type croît linéairement avec le temps et dont la limite quand $t \rightarrow 0$ est la distribution de Dirac :

$$\int_{-\infty}^{\infty} x^2 c(z, t) dz = 2Dt. \quad (2.10)$$

L'équation de convection diffusion brownienne ajoutée à l'équation (2.8) la prise en considération du mouvement fluide, ainsi, connaissant \vec{u} le vecteur vitesse du fluide, (2.8) se réécrit :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla(D\nabla c) - \nabla(\vec{u}c). \quad (2.11)$$

C'est une équation aux dérivées partielles (EDP) parabolique non stationnaire où le terme de diffusion est représenté par le produit $\nabla(D\nabla c)$. La diffusion est alors dite normale.

La relation entre mécanismes de dépôt par diffusion et taille des particules via l'expression du paramètre de diffusion D offre une nouvelle perspective pour la discrimination particule/fluide et est accompagnée par le développement de dispositifs de mesure comme les batteries de diffusion. La notion de diamètre équivalent intervenant cette fois revient à considérer un diamètre thermodynamique ⁴.

Les batteries de diffusion

Congues à l'origine en 1900 pour le calcul du coefficient de diffusion des ions dans divers gaz par [Townsend, 1900], le développement des batteries de diffusion pour la mesure des aérosols a fait l'objet de nombreuses recherches conduisant à la création de dispositifs à géométries diverses : faisceau de tubes cylindriques ou de plaques parallèles, des grilles, des lits granulaires. L'histoire de cet instrument est retranscrite par [Knutson, 1999]. Le principe de base de fonctionnement de ce dispositif consiste à introduire un aérosol dans un système où le dépôt par diffusion sur les parois d'un flux laminaire d'aérosol est en cours. Mesurer la concentration en particules (filtres, CNC) amont et aval permet alors une estimation du coefficient de diffusion et donc du diamètre des particules. En effet, contrairement aux molécules du gaz porteur qui rebondissent sur les parois suite à une collision, les particules elles restent collées, ainsi la concentration en particules au voisinage des parois est nulle, d'où la création d'un flux diffusionnel vers les parois. La fonction de pénétration P_c qui traduit les pertes par diffusion en fonction du diamètre des particules est alors donnée comme le ratio entre la concentration en nombre entrante c_{in} et celle sortante c_{out} et est dépendante de la géométrie de la batterie de diffusion choisie (représentée par le facteur ς) :

$$P_c(\varsigma) = \frac{c_{in}}{c_{out}}. \quad (2.12)$$

Cette fonction peut être évaluée expérimentalement ou théoriquement. L'estimation de la DGN est ensuite effectuée à partir des valeurs prises par la fonction de pénétration et de la concentration en nombre calculée en sortie du dispositif. Le calcul de la concentration en nombre de particules en aval des batteries de diffusion est communément effectuée par un CNC comme pour l'exemple présenté sur la figure 2.7 extraite de [Gensdarmes, 2008]. Le CNC à flux continu est l'instrument le plus couramment utilisé pour mesurer la concentration en nombre des aérosols ultra-fins. Les particules étant trop petites pour être détectées par les compteurs optiques classiques, il s'agit de les grossir avant de les dénombrer. Le principe de grossissement d'une particule est basé sur la condensation d'une vapeur sursaturée, de butanol ou d'eau le plus souvent, sur la particule à détecter. Lorsque la vapeur entourant les particules atteint un certain degré de sursaturation, la vapeur commence à se condenser sur les particules. On parle de condensation hétérogène. Si la sursaturation devient suffisamment élevée, la condensation peut avoir lieu en l'absence de particules. On parle cette fois de nucléation homogène : les molécules du gaz porteur se regroupent pour former des «clusters» en raison du mouvement du gaz et des forces d'attraction de *Van Der Waals* qui régissent les interactions électriques de faible intensité entre molécules et atomes notamment. Le degré de sursaturation R_{sursat} est évalué par un rapport de saturation, défini comme la vapeur de pression partielle P_p divisée par la tension de vapeur saturante P_s à une température donnée :

$$R_{sursat} = \frac{P_p}{P_s}. \quad (2.13)$$

La taille minimale de particules capable d'agir comme noyau de condensation est modélisée par le diamètre dit de *Kelvin*, noté x_{Kel} et défini par la relation suivante :

$$x_{Kel} = \frac{4\gamma_s M_s}{\rho R T_a \ln(R_{sursat})}, \quad (2.14)$$

⁴Le diamètre thermodynamique est le diamètre de la sphère ayant le même coefficient de diffusion que la particule étudiée.

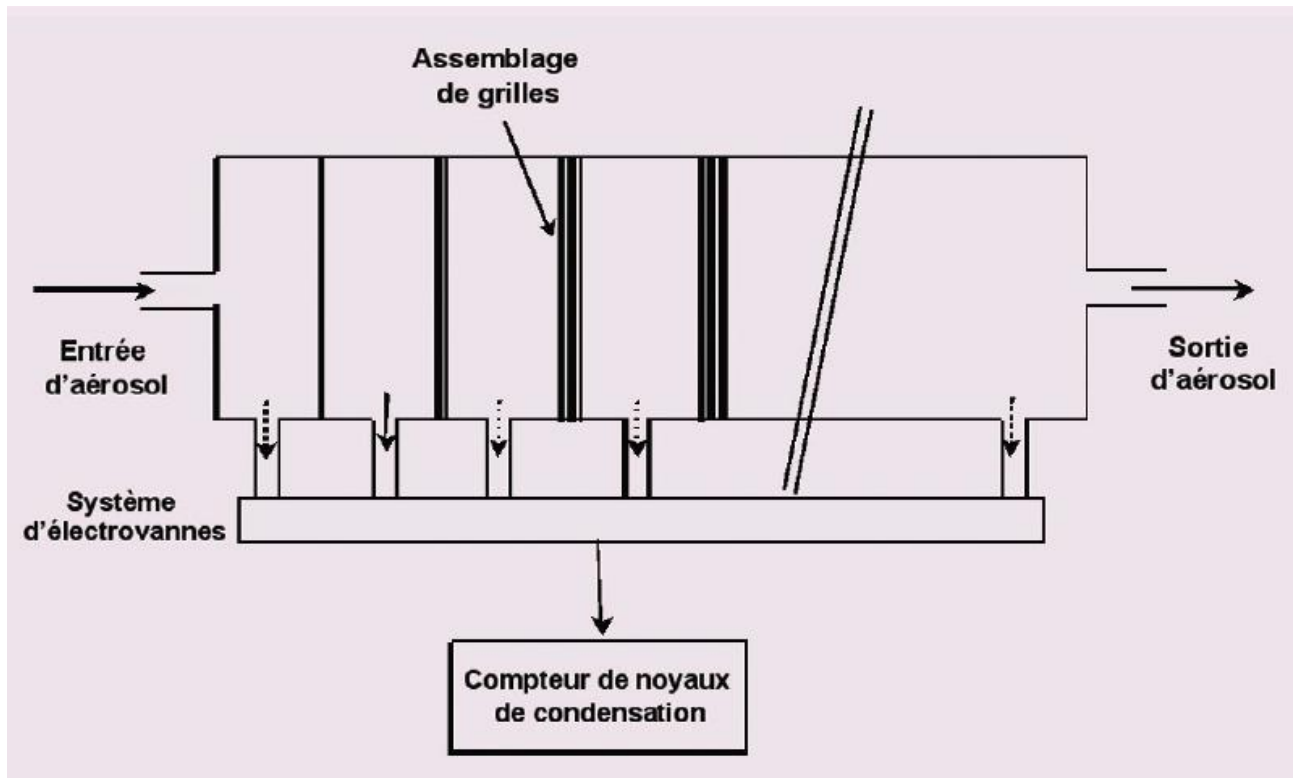


Figure 2.7: Exemple de système de mesure utilisant une batterie de diffusion à grille et un CNC [Gensdarmes, 2008].

où γ_s est la tension de surface du fluide condensé, M_s la masse moléculaire du fluide condensé, R la constante universelle des gaz, ρ la densité du fluide condensé et T_a la température absolue. Ainsi x_{Kel} est généralement de l'ordre de quelques nanomètres (entre 3 nm et 10 nm) pour les CNC commercialisés à ce jour. Laser et photo-détecteurs sont ensuite chargés de la détection des microgouttelettes ainsi générées. La figure 2.8 présente le CNC utilisé au laboratoire et son schéma de fonctionnement associé. La séparation entre instrument dédié à la sélection et instrument dédié à la détection des

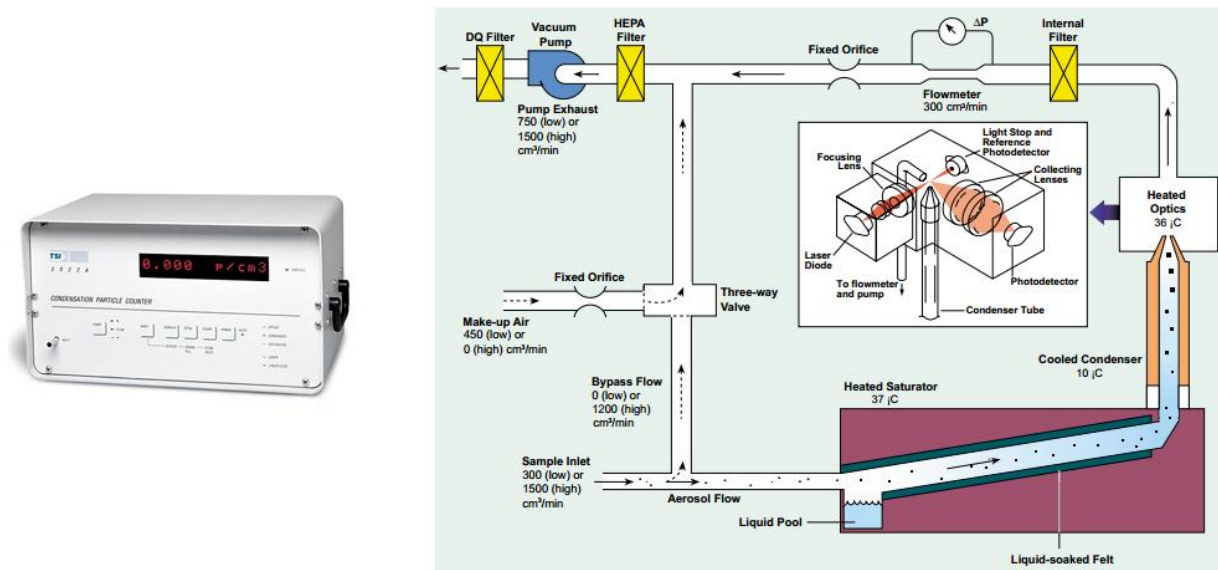


Figure 2.8: Photo d'un CNC modèle 3022A de la compagnie TSI (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite) extraite du manuel d'utilisation de l'instrument.

particules d'aérosol a donné naissance à d'autres dispositifs. Parmi ces associations, un exemple est

le Spectromètre Diffusionnel et Inertiel (SDI) développé par [Boulaud and Diouri, 1988] qui associe en série un impacteur en cascade (2.1.1) avec une batterie de diffusion à lits de billes de verre.

2.1.3 Mesure de la distribution en diamètre de mobilité électrique

La mesure de la distribution des particules en diamètre aérodynamique ou diamètre thermodynamique se référant respectivement à des principes de séparation inertielle ou diffusionnelle laisse place depuis quelques années à une autre technique de sélection basée sur les propriétés électriques des particules. Lorsqu'elles sont entraînées par un fluide, les particules sont soumises à des forces d'inertie \vec{F}_i et de traînée \vec{F}_t exprimées respectivement par la masse de la particule m fois son accélération $\frac{d\vec{v}}{dt}$ pour la première et comme une correction de la loi de Stokes en fonction du milieu pour la seconde, leurs expressions étant données comme suit :

$$\vec{F}_i = m \frac{d\vec{v}}{dt}, \quad \vec{F}_t = \frac{3\pi\eta x}{C_c(x)} (\vec{u} - \vec{v}). \quad (2.15)$$

Lorsque les particules aéroportées portant p charges élémentaires sont soumises à un champ électrique \vec{E} , aux forces inhérentes aux particules en mouvement dans un fluide vient s'ajouter une force électrique \vec{F}_e . Cette force s'exprime comme le produit de la charge p par le champ électrique \vec{E} appliqué :

$$\vec{F}_e = p\vec{E}. \quad (2.16)$$

L'égalisation des forces (de traînée et électriques) conduit à l'expression de la vitesse de migration électrophorétique finale \vec{v}_e :

$$\vec{v}_e = Z\vec{E}, \quad (2.17)$$

où Z est la mobilité électrique des particules (vitesse de migration de la particule par unité de champ électrique). Une pratique courante pour le calcul des forces de traînée est de définir la mobilité mécanique de la particule, notée \mathcal{B} , telle que :

$$\mathcal{B}(x) = \frac{C_c(x)}{3\pi\eta x}, \quad (2.18)$$

comme la force de traînée par unité de vitesse relative entre le gaz porteur et la particule. Ainsi, $\vec{v}_e = Z\vec{E} = p\mathcal{B}\vec{E}$. La mobilité électrique Z définie en fonction de la tension U peut alors être exprimée en fonction du diamètre x des particules par l'intermédiaire d'une nouvelle expression de la mobilité électrique, notée Z_d , et définie par la relation suivante :

$$Z_d(x) = p\mathcal{B}(x) = \frac{pC_c(x)}{3\pi\eta x}. \quad (2.19)$$

La sélection des particules repose sur l'évaluation de la mobilité électrique pour une tension contrôlée et sa traduction en terme de diamètre de mobilité électrique équivalent ⁵. Les deux paragraphes suivants proposent une liste non exhaustive des dispositifs utilisant cette méthode de discrimination particules/fluide ainsi que différentes stratégies pour conférer à l'aérosol en entrée du système une charge électrique donnée. En effet, l'étape qui consiste à transmettre une charge électrique aux particules aéroportées est d'importance car comme la relation (2.19) l'indique, le critère de sélection dépend à la fois du nombre de charges p portées par la particule et de son diamètre x . Par définition, la fonction Z_d n'est pas bijective, ainsi, à une mobilité électrique donnée peut correspondre plusieurs diamètres de mobilité électrique traduisant la présence de 1, 2 ou plus de charges ce qu'illustre la figure 2.9. Pour conférer un état de charges aux particules, une création artificielle d'ions dans le gaz est effectuée par le biais de chargeurs. Deux catégories de chargeurs sont employés : les chargeurs unipolaires

⁵Le diamètre de mobilité électrique est le diamètre de la sphère dont la mobilité électrique Z_d est égale à celle de la particule étudiée.

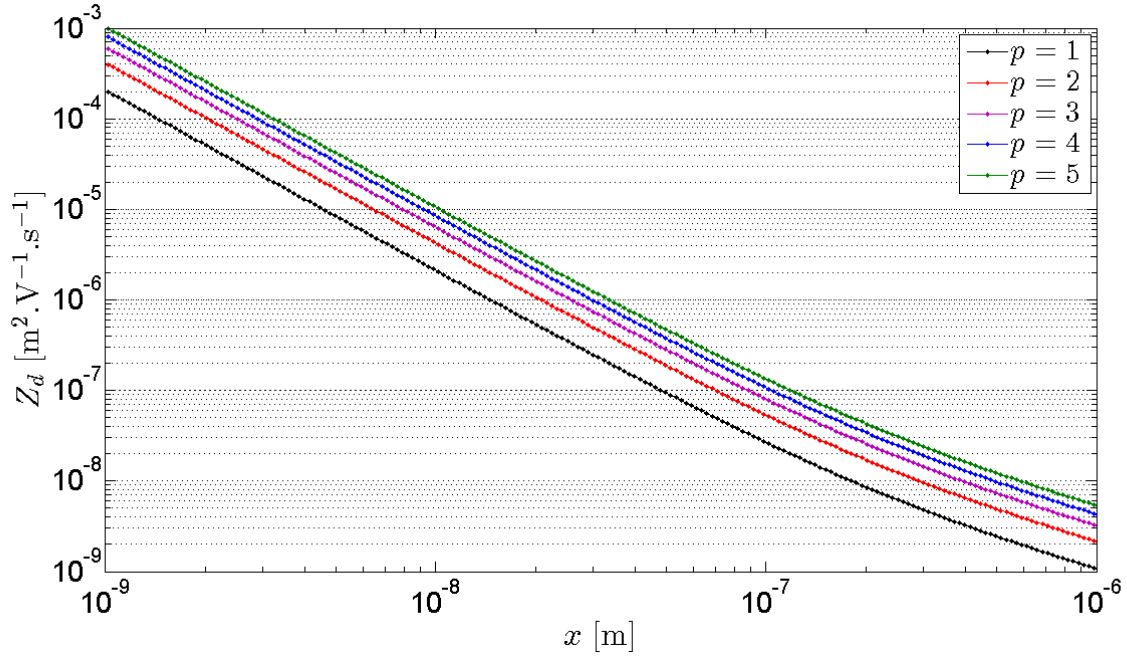


Figure 2.9: Mobilité électrique Z_d en fonction du diamètre x et du nombre de charges p pour $p = 1, 2, 3, 4, 5$.

qui utilisent l'effet couronne et les chargeurs bipolaires ou «neutraliseurs» qui utilisent une source radioactive. Les chargeurs à effet couronne utilisent les mécanismes dit de charge par diffusion et par champ électrique. Conçus avec une ou plusieurs pointes métalliques alimentées par une haute tension (quelques kV) et balayées par un débit d'air, ils permettent la création d'un plasma froid à pression atmosphérique par décharge entre deux électrodes [Goldman et al., 1985]. La tension est appliquée pendant un temps inférieur au temps de passage à l'arc qui produirait un plasma thermique. Les ions au voisinage de la pointe sont transmis aux particules dans les régions d'ionisation créées par la décharge. La production d'ions est très importante dans ce type de dispositif, toutefois, un contrôle de cette production peut être assuré en ajustant la valeur du courant. Ce type de chargeur permet d'obtenir une population de particules dont la répartition des charges électriques (positives ou négatives selon la polarité de la tension appliquée) est connue. Les chargeurs à effet couronne peuvent aussi être employés pour la neutralisation de l'aérosol à l'étude, cependant, il est préférable de choisir les chargeurs bipolaires [Bemer et al., 2011]. En effet, les sources radioactives telles que l'Américium (^{241}Am), le Krypton (^{85}Kr), ou encore le Polonium (^{210}Po) sont couramment utilisées pour la création d'ions bipolaires qui vont ensuite neutraliser l'aérosol : dans un milieu gazeux contenant des particules et une concentration suffisamment forte d'ions bipolaires, une distribution bipolaire de charges se développe sur les particules aéroportées en raison du mouvement thermique aléatoire des ions et des collisions fréquentes ions/particules. Les aérosols étant par nature chargés électrostatiquement, cette étape permet de conférer aux particules une distribution de charges contrôlée.

Le spectromètre de mobilité électrique

Le «Scanning Mobility Particle Sizer» (SMPS) est un dispositif qui couple un classificateur électrostatique appelé Analyseur Différentiel de Mobilité Électrique (DMA) pour la sélection des particules et un CNC en aval pour le dénombrement. Préalablement à la sélection, un impacteur inertiel permet de retirer les particules présentant les plus gros diamètres, la gamme de mesure de l'instrument s'étendant de 1 nm à 1 μm . Ensuite les particules sont chargées par une source radioactive (^{85}Kr pour le SMPS 3936 utilisé) ou un chargeur à effet couronne afin de conférer un état de charges contrôlé aux particules avant leur sélection. Finalement les particules aéroportées, chargées entrent dans la colonne du DMA où elles sont soumises à un champ électrique induit par une différence de potentiel

entre deux électrodes cylindriques qui va provoquer la migration des particules à travers la colonne DMA de la buse d'injection d'aérosol vers la zone de collection. La migration des particules chargées vers la sortie de l'analyseur est dépendante de leurs diamètres de mobilité électrique et du nombre de charges électriques qu'elles portent. Tension et diamètre de mobilité électrique sont intimement liés ; en effet, la tension appliquée à l'électrode centrale du DMA correspond à un diamètre de mobilité électrique extrait pour chaque temps, on parle de diamètre nominal d'extraction pour chaque tension appliquée. Comme la tension évolue continument au cours de la mesure, d'où l'expression scanning, on peut scruter une large gamme de diamètres de mobilité électrique, ce qui permet une caractérisation de l'aérosol sur plusieurs ordres de grandeur. Les particules sont enfin regroupées par canaux de mobilité électrique, où chaque canal correspond à un intervalle de diamètres. Une fois sélectionnées, les particules, après transport entre la zone d'extraction de la colonne du classificateur électrostatique vers la chambre de détection du CNC, sont dénombrées. La figure 2.10 présente le SMPS modèle 3936 de la société TSI utilisé au laboratoire et le schéma de fonctionnement associé. Pour résumer, la

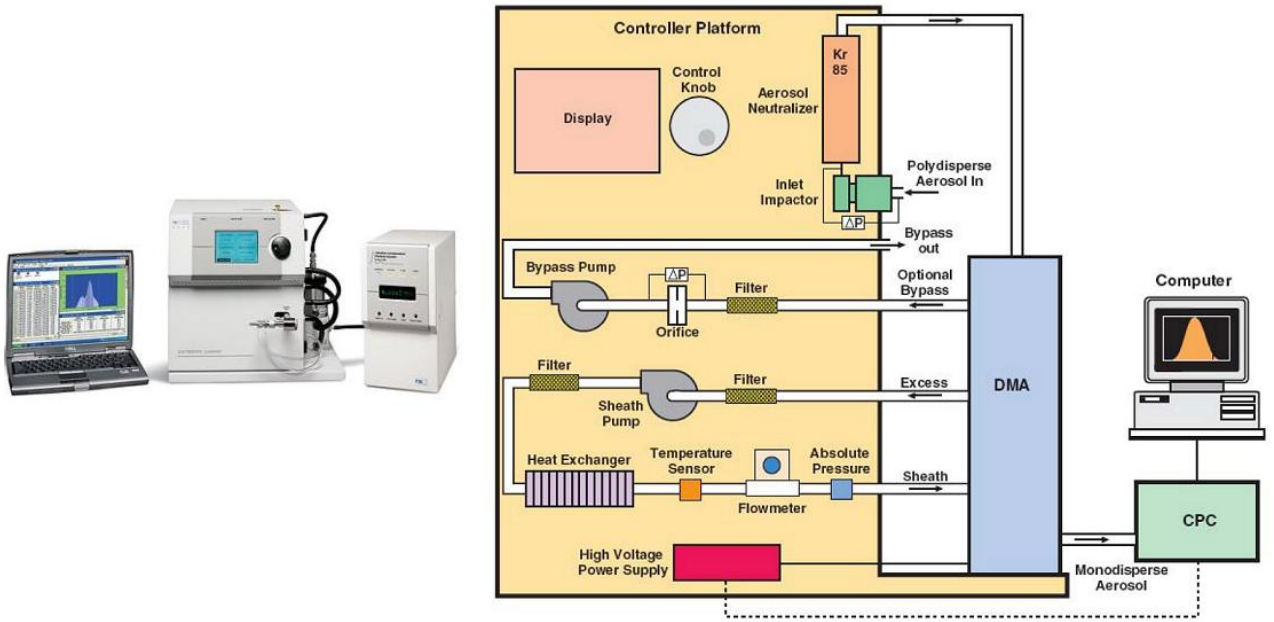


Figure 2.10: Photo d'un SMPS modèle 3936 (figure de gauche) et le schéma de fonctionnement associé (figure de droite) extraite du manuel d'utilisation de l'instrument.

théorie de l'analyse différentielle de mobilité électrique se base sur la relation entre temps t , tension appliquée à l'électrode centrale du DMA $U(t)$, mobilité électrique $Z_u(U(t))$ correspondant à la valeur de la tension à partir de laquelle en posant $Z_u(U(t)) = Z_d(p, x)$ on retrouve le diamètre équivalent de mobilité électrique x . [Knutson and Whitby, 1975b] définirent en premier la relation entre la mobilité électrique nominale d'extraction Z_u pour une tension fixée U , un débit d'aérosol Q_a , un débit d'air filtré Q_{sh} et les paramètres géométriques de la colonne DMA L , r_1 , r_2 (longueur de la colonne et rayons des électrodes intérieur et extérieur) comme :

$$Z_u(U) = \frac{(Q_{sh} + Q_a) \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)}{4\pi LU}. \quad (2.20)$$

Pour chaque tension U , à partir de l'équation (2.20) et de l'expression de Z_d en (2.19), il est possible de calculer un diamètre nominal d'extraction en posant $Z_d(p, x) = Z_u(U)$. Nous nous intéressons dans cette thèse au cas où le DMA opère en mode scanning, et dans ce cadre, le résultat de mesure est un nombre de particules comptées en fonction du temps. Une inversion de données permet à partir de cette mesure de fournir une estimation de la DGN sous la condition de modéliser finement le processus de mesure et toutes ses composantes. La modélisation du fonctionnement de l'instrument fait l'objet de la section suivante.

2.2 Modèle de réponse du SMPS

Les mesures effectuées par le SMPS sont des mesures «inline» que l'on qualifie de mesures quasi temps réel car il existe un retard entre la sélection des particules par le classificateur électrostatique et la détection par le compteur à noyau de condensation. La mesure de la distribution granulométrique de l'aérosol n'est pas directe et nécessite une inversion de données à partir des comptages effectués par le CNC. Cet aspect relatif au post-traitement des données sera traité en détails dans le chapitre 2. Cette section se focalise sur la définition du modèle de mesure qui sera par la suite employé dans la procédure d'inversion. La modélisation requiert une connaissance approfondie de la physique des aérosols et des mécanismes mis en jeu lors de la mesure. Le modèle présenté exprime la relation entre le comptage y du CNC à un temps t , et la DGN f lorsque la mesure n'est entachée d'aucune erreur.

Soit x le diamètre de particule et \mathcal{K} la fonction spatio-temporelle (diamètre-temps) représentant la physique du système reliant f à $y(t)$, alors la réponse de l'instrument à un instant t donné s'exprime de la façon suivante :

$$y(t) = \int_0^{+\infty} \mathcal{K}(t, x) f(\log(x)) d\log(x). \quad (2.21)$$

La modélisation prend en compte l'aspect dynamique de la mesure sous hypothèse de stationnarité de la distribution en taille de particule f , ce qui se justifie par le temps réduit nécessaire à la mesure (entre 30 s et 180 s généralement). Le CNC dénombre les particules et produit une mesure toutes les 100 ms. Ces comptages sont ensuite regroupés en canaux de mesure afin de fournir une mesure sur un intervalle de temps plus long, de l'ordre d'une seconde. L'instrument offre la possibilité de choisir le nombre de canaux pour la représentation des résultats de mesure, ainsi l'utilisateur peut choisir entre 16, 32, et 64 canaux par ordre de grandeur. La gamme de mesure couvrant 3 ordres de grandeur, la résolution maximale est 3×64 , soit 192 canaux. L'observation pour le $i^{\text{ème}}$ canal, noté $Y[i]$, va donc correspondre à la moyenne des observations dans l'intervalle de temps $[T[i], T[i] + T_c[i]]$, $T_c[i]$ et $T[i]$ étant respectivement le temps de comptage et le temps d'arrivée de la première particule dans le canal i . Suivant le même raisonnement, la fonction \mathcal{K} est modélisée par sa valeur moyenne sur le canal i représentée par la fonction k_i de sorte que (2.21) se récrive :

$$Y[i] = \int_0^{+\infty} k_i(x) f(\log(x)) d\log(x) \quad , i = 1, \dots, m_c, \quad (2.22)$$

m_c étant le nombre de classes.

La fonction k_i représentante de la physique modélise les 3 phases majeures de la mesure que sont la neutralisation des charges, la sélection des particules et leur détection. Soient $\phi(p, x)$ la fraction des particules de diamètre x portant p charges à la fin de la phase de neutralisation, $\bar{\omega}_i(p, x)$ la fonction de transfert moyenne du classificateur DMA pour le canal i pour une particule de diamètre x portant p charges et enfin $\nu(x)$ l'efficacité de détection du compteur pour une particule de diamètre x , alors k_i est définie par la relation :

$$k_i(x) = Q_a T_c[i] \sum_{p=1}^{+\infty} \phi(p, x) \bar{\omega}_i(p, x) \nu(x). \quad (2.23)$$

Dans cette expression, l'évolution temporelle initialement représentée par \mathcal{K} est remplacée par l'expression de la fonction de transfert moyenne $\bar{\omega}_i$ dans k_i définie par [Wang and Flagan, 1990] comme :

$$\bar{\omega}_i(p, x) = \frac{1}{T_c[i]} \int_{T[i]}^{T[i] + T_c[i]} \omega(p, x, t) dt. \quad (2.24)$$

Les fonctions ν et ϕ sont quand-à elles invariantes en temps, la première ne dépend que du diamètre des particules et la seconde du diamètre et du nombre de charges portées. Il est important de noter que le temps de comptage pour chaque canal n'est pas constant mais calculé comme le temps nécessaire à la mobilité électrique pour passer du diamètre représentant du canal i au diamètre représentant du

canal $i + 1$. Il s'agit tout d'abord de définir les représentants de chaque canal i notés $x[i]$. Soient $x_g[i]$, $x[i]$ et $x_d[i]$ respectivement les diamètres minimum, géométrique et maximum associés au $i^{\text{ème}}$ canal, en posant $x_g[1] = 1.000 \times 10^{-9}$ m, $x[1] = 1.018 \times 10^{-9}$ m et $x_d[1] = \frac{x[1]^2}{x_g[1]}$, une discrétisation uniforme en échelle logarithmique est définie. Les valeurs arbitraires posées pour $x_g[1]$ et $x[1]$ sont en accord avec la discrétisation réalisée pour le modèle SMPS 3936 utilisé aussi bien au LNE qu'à l'IRSN. Ce choix est donc dépendant de l'instrument et les valeurs doivent être mises à jour quand un autre appareil est utilisé.

Ensuite, pour l'expression de la mobilité électrique Z_u , il est nécessaire de définir l'évolution de la tension en fonction du temps $U(t)$. [Wang and Flagan, 1990] définirent une rampe exponentielle d'évolution du champ électrique et ils furent repris par [Collins et al., 2004] qui proposèrent la modélisation suivante pour la rampe exponentielle de tension :

$$U(t) = U_{min} \exp \left(\frac{t}{t_s} \ln \left(\frac{U_{max}}{U_{min}} \right) \right), \quad (2.25)$$

où t_s est le temps de scanning, U_{min} et U_{max} les tensions minimale et maximale pour la mesure effectuée. Pour chaque représentant $x[i]$, il est donc possible d'exprimer la mobilité électrique pour p égal à une charge à partir de (2.17) de sorte que :

$$Z_d(x[i]) = \frac{eC_c(x[i])}{3\pi\eta x[i]} = \frac{(Q_{sh} + Q_a) \ln \left(\frac{r_2}{r_1} \right)}{4\pi L U(t[i])} = Z_u(U(t[i])). \quad (2.26)$$

Le temps de comptage dans le canal i est alors donné comme la différence entre $t[i + 1]$ et $t[i]$ en résolvant (2.26) :

$$T_c[i] = \frac{t_s}{\ln \left(\frac{U_{max}}{U_{min}} \right)} \left[\ln \left(\frac{U(t[i + 1])}{U_{min}} \right) - \ln \left(\frac{U(t[i])}{U_{min}} \right) \right]. \quad (2.27)$$

La figure 2.11 illustre l'évolution du temps de comptage pour chaque canal i représenté par son diamètre géométrique $x[i]$. On observe une diminution du temps de comptage pour les plus grands diamètres. Cela s'explique car le temps de comptage est calculé comme le temps de passage à travers une classe en terme de mobilité électrique. Or la mobilité électrique est inversement proportionnelle au diamètre. A présent, il s'agit d'explicitier les modèles retenus pour les fonctions ϕ , ω et ν dans l'équation (2.23). Les sections 2.2.1, 2.2.2, 2.2.3 proposent à la fois un bref état de l'art des modèles existants pour représenter mathématiquement chacun des phénomènes physiques ainsi que les choix réalisés.

2.2.1 Modélisation de la loi de charges

Les particules d'aérosols en suspension dans une atmosphère ionique bipolaire se chargent par capture d'ions gazeux. Quelle que soit la distribution de la charge initiale sur les particules, après un certain temps, un régime stationnaire s'établit dans lequel le nombre de particules portant p charges élémentaires (positives ou négatives) capturant un ion de même signe par unité de temps est égal au nombre de particules portant $p + 1$ charges capturant un ion de signe opposé. En effet, par collision avec les particules d'air sous l'effet de la source, les particules neutres d'aérosol vont acquérir une certaine charge alors que les particules qui étaient initialement chargées vont perdre un certain nombre de charges du fait de l'agitation thermique et de la force électrostatique. La distribution stationnaire de charges après la phase de neutralisation a tout d'abord été modélisée par la loi de *Boltzmann* :

$$\begin{aligned} \phi(p, x) &= \frac{\exp(-p^2/2\sigma^2(x))}{\sum_{p=-\infty}^{\infty} \exp(-p^2/2\sigma^2(x))}, \\ \sigma(x) &= \frac{\sqrt{xk_bT}}{e}. \end{aligned} \quad (2.28)$$

L'équilibre de la distribution bipolaire des charges portées par les particules d'aérosol, lorsque traité uniquement comme un problème de diffusion des ions sur les particules suit la loi de *Boltzmann*.

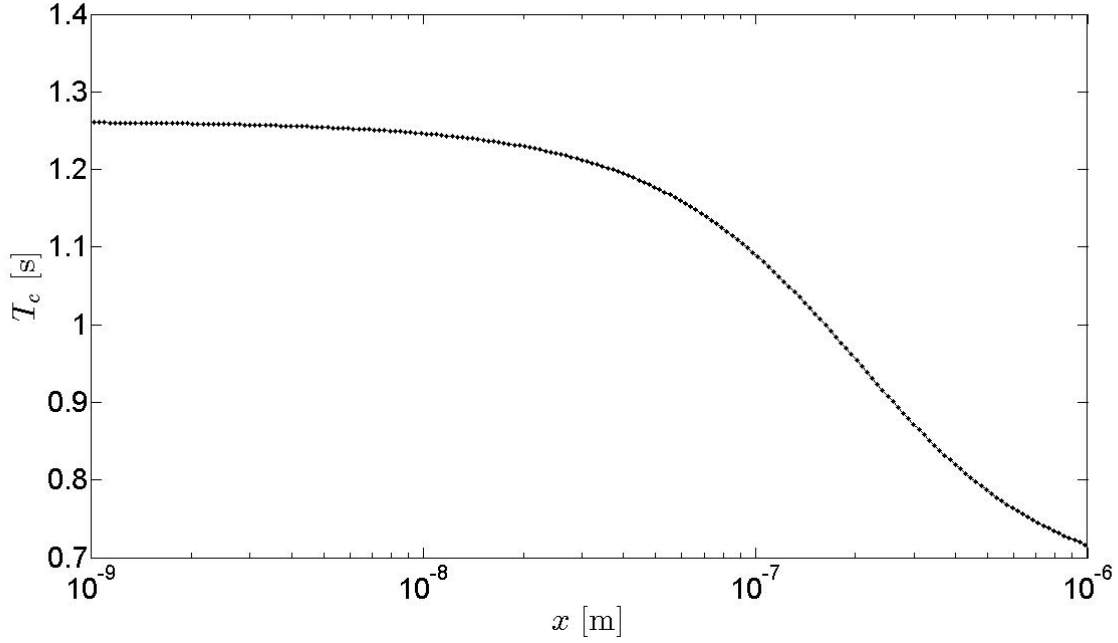


Figure 2.11: Évolution du temps de comptage T_c en fonction des diamètres géométriques x représentant chacun des canaux de mesure.

[Bricard, 1949], [Gunn, 1954], [Junge, 1955], ou encore [Keefe et al., 1959] pour ne citer qu'eux ont utilisé cette approche. [Fuchs, 1963] critiqua la démarche entreprise par ces auteurs en suggérant que la distribution de charges ne pouvait être obtenue qu'en considérant les détails relatifs aux mécanismes de collisions entre les ions et les particules pour les aérosols ultra-fins et il concéda que pour les particules de plus gros diamètres, la loi de Boltzmann pouvait être employée (selon Fuchs, la condition d'applicabilité des équations de Boltzmann se limite aux particules dont le diamètre $x \geq 600$ nm sous conditions de pression atmosphérique).

La théorie de Fuchs

La loi de Boltzmann s'applique aux états d'équilibre alors que les interactions entre les ions et les particules sont des processus d'état stationnaire. *Fuchs* considéra ce problème en traitant le flux d'ions à travers une particule d'aérosol sphérique en utilisant la méthode dit de la «sphère limite» introduite initialement par *Arendt* et *Kallmann* en 1926. La théorie de la sphère limite suppose deux régions séparées par une sphère imaginaire concentrique à la particule. A l'extérieur de la sphère, le mouvement ionique est décrit par les équations de diffusion-mobilité relatives au régime continue. Les ions émergeant de la sphère et se déplaçant à l'intérieur sont supposés ne pas entrer en collision avec les molécules de gaz, de ce fait la théorie cinétique des gaz ainsi que la dynamique hamiltonienne peuvent être appliquées, on est alors dans le cadre du régime moléculaire libre. Le nombre de collisions entre les ions et les particules dépend de la mobilité des ions, de leur masse, mais aussi du diamètre des particules et du signe des charges élémentaires qu'elles portent. Ce taux de collision est quantifié par les coefficients d'attachement ou de combinaison ions/particules qui sont calculés par égalisation des flux ioniques à la surface de la sphère limite. Si l'on note β_p^\pm le coefficient d'attachement des ions positifs ou négatifs avec une particule portant p charges, p étant considéré comme positif si les charges des ions et de la particule sont de même signe, alors :

$$\beta_p^\pm = \frac{\pi v_I^\pm \alpha^\pm \delta^{\pm 2} \exp\left(-\frac{\varphi(\delta)}{k_b T}\right)}{1 + \exp\left(-\frac{\varphi(\delta^\pm)}{k_b T}\right) \frac{v_I^\pm \alpha^\pm \delta^{\pm 2}}{4D^\pm a} \int_0^{\frac{a}{\delta^\pm}} \exp\left(\frac{\varphi\left(\frac{a}{\xi}\right)}{k_b T}\right) d\xi}, \quad (2.29)$$

où a est le rayon de la particule, $\xi = \frac{a}{r}$ (r étant la distance entre la particule et l'ion), δ^\pm le rayon de la sphère limite, α^\pm la probabilité de collision entre un ion positif ou négatif et la particule et enfin φ l'énergie potentielle électrostatique d'un ion quand celui-ci se déplace dans le champ électrostatique de la particule chargée. δ^\pm dépend du rayon de la particule a et du libre parcours moyen des ions positifs ou négatifs λ^\pm par la relation donnée par [Wright, 1960] :

$$\delta^\pm = \frac{a^3}{\lambda^{\pm 2}} \left[\frac{1}{5} \left(1 + \frac{\lambda^\pm}{a} \right)^5 - \frac{1}{3} \left(1 + \frac{\lambda^{\pm 2}}{a^2} \right) \left(1 + \frac{\lambda^\pm}{a} \right)^3 + \frac{2}{15} \left(1 + \frac{\lambda^\pm}{a} \right)^{\frac{5}{2}} \right]. \quad (2.30)$$

α^\pm souvent appelé paramètre de *Fuchs* représente quant-à lui la fraction d'ions qui entrent dans la sphère limite et atteignent la particule pour transférer leur charge. En l'absence de forces électriques, cette probabilité de collision est définie par :

$$\alpha^\pm = \left(\frac{a}{\delta^\pm} \right)^2. \quad (2.31)$$

En revanche, dans le cas de particules chargées, α^\pm est calculé comme le paramètre de collision b de distance apoïdale minimale comme décrit par [Natanson, 1960]. Ainsi, α^\pm s'exprime comme le quotient :

$$\alpha^\pm = \frac{b_{min}}{\delta}, \quad (2.32)$$

où b_{min} est le minimum de :

$$b^2 = r^2 \left(1 + \frac{2}{3k_b T} (\varphi(\delta) - \varphi(r)) \right), \quad (2.33)$$

et φ s'exprime comme l'intégrale de la force d'interaction entre ion et particule F_{int} à une distance r du centre de la particule :

$$\varphi(r) = \int_r^{+\infty} F_{int} dr = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{ie^2}{r} - \frac{(\epsilon - 1)e^2}{\epsilon + 1} \frac{a^3}{2r^2(r^2 - a^2)} \right). \quad (2.34)$$

Le premier terme entre parenthèse dans l'équation (2.34) fait référence aux forces de *Coulomb* alors que le second terme correspond à la force de l'interaction d'image induite par l'ion. En posant $\frac{db^2}{dr} = 0$, on peut alors calculer le paramètre de collision minimal. *Fuchs* considéra $b = 1$ dans le cas de forces électriques agissant entre ions et particules. [Hoppel and Frick, 1986] démontrèrent l'inexactitude de l'hypothèse de *Fuchs* et proposèrent de nouvelles estimations de la probabilité de collision. Connaissant les coefficients d'attachement entre les ions et les particules, le processus d'acquisition de charges par les particules aéroportées pour un aérosol monodispersé est modélisé par le système d'équations différentielles suivant [Marlow and Brock, 1975] :

$$\frac{dc_p^\pm}{dt} = \beta_{2p-1}^\pm c_I^\pm c_{p-1}^\pm + \beta_{1p+1}^\mp c_I^\mp c_{p+1}^\pm - \beta_{2p}^\pm c_I^\pm c_p^\pm - \beta_{1p}^\mp c_I^\mp c_p^\pm, \quad (2.35)$$

où c_p et c_I^\pm représentent respectivement la concentration en nombre de particules portant p charges élémentaires de signes positifs ou négatifs et la concentration en ions positifs ou négatifs. Sous l'hypothèse de conditions d'états stationnaires ($\frac{dc_p^\pm}{dt} = 0$), [Hussin et al., 1983] donnent une expression de la fraction de particules de diamètre x portant p charges après la phase de neutralisation :

$$\phi(p, x) = \begin{cases} \frac{\prod_{p=+1}^{+\infty} \left(\frac{\beta_{p-1}^+}{\beta_p^+} \right)}{\prod_{p=+1}^{+\infty} \left(\frac{\beta_{p-1}^-}{\beta_p^-} \right)}, & \text{si } p \geq 1 \\ \frac{\prod_{p=+1}^{+\infty} \left(\frac{\beta_{p+1}^-}{\beta_p^-} \right)}{\prod_{p=-1}^{-\infty} \left(\frac{\beta_{p+1}^+}{\beta_p^+} \right)}, & \text{si } p \leq -1 \\ \frac{1}{\prod_{p=-1}^{-\infty} \left(\frac{\beta_{p+1}^+}{\beta_p^+} \right)}, & \text{sinon.} \end{cases} \quad (2.36)$$

$$\Sigma = \sum_{p=1}^{+\infty} \left[\prod_{p=+1}^{+\infty} \left(\frac{\beta_{p-1}^+}{\beta_p^+} \right) \right] + \sum_{p=-1}^{-\infty} \left[\prod_{p=-1}^{-\infty} \left(\frac{\beta_{p+1}^-}{\beta_p^-} \right) \right] + 1. \quad (2.37)$$

2.2 Modèle de réponse du SMPS

Contrairement aux équations de *Boltzmann*, le calcul de la distribution de charges requiert ici la connaissance des propriétés ioniques modélisées par les variables D_I^\pm , v_I^\pm et λ_I^\pm . Ces propriétés ioniques sont décrites dans la norme ISO15900 [Standard, 2009] comme obtenues par la théorie fondamentale de la cinétique des gaz. Ainsi, le coefficient de diffusion est lié à la mobilité électrique des ions Z_I^\pm par la relation d'*Einstein* :

$$D_I^\pm = \frac{k_b T Z_I^\pm}{e}. \quad (2.38)$$

La vitesse thermique des ions est donnée comme une fonction de la masse des ions positifs ou négatifs m_I^\pm par l'équation :

$$v_I^\pm = \sqrt{\frac{8k_b T}{\pi m_I^\pm}}, \quad (2.39)$$

Partant des expressions de v_I^\pm et de D_I^\pm , le libre parcours moyen des ions λ_I^\pm est modélisé dans la plupart des travaux relatifs à la neutralisation des aérosols en milieu ionique bipolaire par les équations de *Maxwell–Chapman–Enskog*. En utilisant une approximation du premier ordre de ces équations, [Bricard, 1965] donne λ_I^\pm comme suit :

$$\lambda_I^\pm = \frac{32}{3\pi} \frac{D_I^\pm}{v_I^\pm} \left(\frac{M}{M + m_I^\pm} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (2.40)$$

[Fuchs and Sutugin, 1970] proposent en 1970 une nouvelle expression :

$$\lambda_I^\pm = \frac{16\sqrt{2}}{3\pi} \frac{D_I^\pm}{v_I^\pm} \left(\frac{M}{M + m_I^\pm} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (2.41)$$

et enfin [Pui, 1976] au cours de ses travaux de thèse sur la charge par diffusion des aérosols apporte une correction à l'expression décrite par *Bricard* en exprimant λ_I^\pm comme :

$$\lambda_I^\pm = \frac{1}{1 + \sigma_\lambda} \frac{32}{3\pi} \frac{D_I^\pm}{v_I^\pm} \left(\frac{M}{M + m_I^\pm} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad \sigma_\lambda = 0.132. \quad (2.42)$$

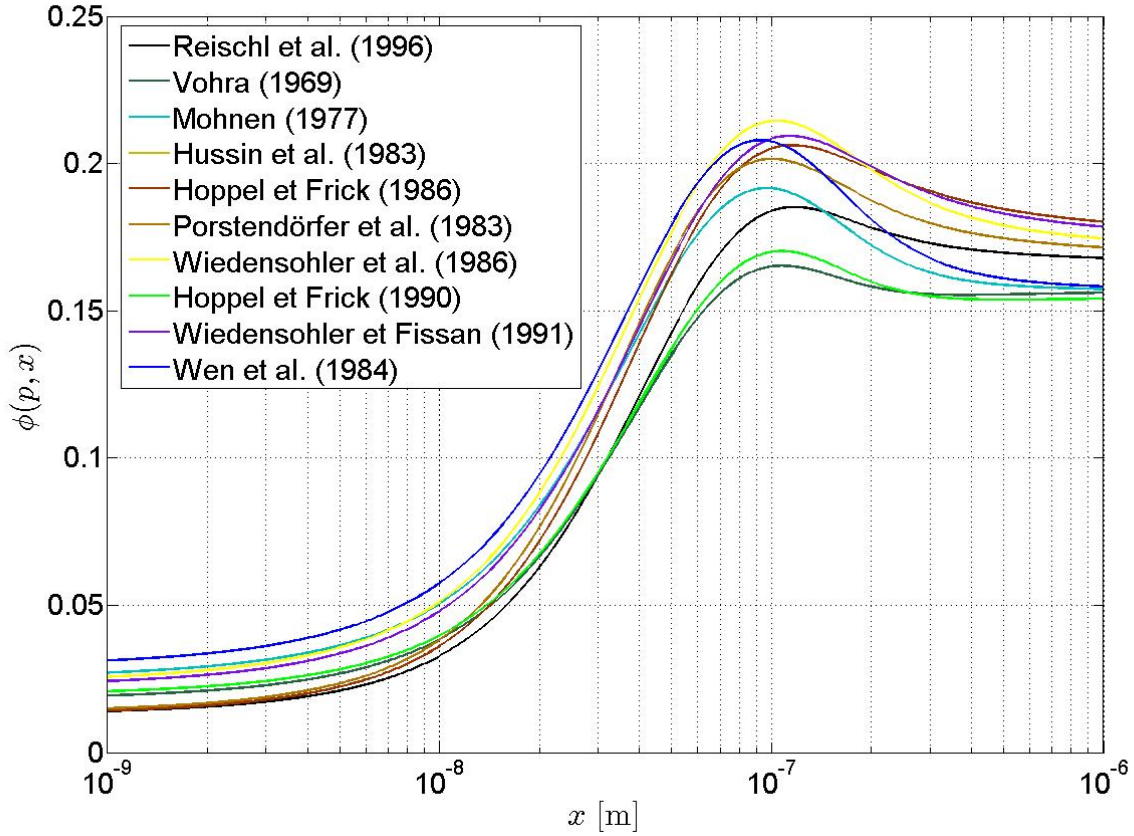
Suivant le même argument que celui donné par [Reischl et al., 1996], afin d'être cohérent avec la théorie de *Fuchs* et les données expérimentales publiées dans la littérature, le choix de modèle pour l'expression du libre parcours moyen des ions se porte sur le modèle de *Fuchs* et *Sutugin*.

L'avantage de la théorie décrite par *Fuchs* est qu'elle nécessite uniquement la connaissance des propriétés ioniques que sont la masse et la mobilité électrique, en effet, les expressions pour D_I^\pm , v_I^\pm et λ_I^\pm sont basées sur la connaissance de ces 4 paramètres. Cette théorie est confrontée depuis quelques années aux résultats expérimentaux afin d'être validée. Parmi les auteurs qui se sont intéressés à cette validation, [Reischl et al., 1996] statue que la théorie de *Fuchs* peut s'appliquer aux particules dont le diamètre est supérieur à 2 nm. Il préconise toutefois de calculer la masse et la mobilité des ions expérimentalement afin de garantir des valeurs adaptées pour les paramètres clés de cette théorie. Le tableau 2.2 liste les valeurs des propriétés ioniques utilisées par divers auteurs et la figure 2.12 illustre la valeur prise par ϕ lorsque les différentes propriétés ioniques décrites dans le tableau sont utilisées et quand on considère une seule charge portée par chaque particule. Il est à noter que les valeurs des propriétés ioniques présentées dans le tableau 2.2 ont été obtenues expérimentalement pour de l'air sec. De ce fait, l'humidité relative et son impact sur la neutralisation sont ici négligés.

Bien que pertinent et adopté par nombre d'auteurs pour le calcul de la fraction de particules d'aérosol chargées suite à la neutralisation, ce modèle reste complexe. Pour ces raisons, [Standard, 2009] recommande d'utiliser les modèles respectivement développés par [Wiedensohler, 1988] et [Gunn, 1954].

Tableau 2.2: Valeurs des propriétés ioniques utilisées dans la littérature par différents auteurs pour de l'air sec.

Auteurs	Z_I^+ [cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹]	Z_I^- [cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹]	m_{I+} [amu]	m_{I-} [amu]
Vohra (1969)	1.40	1.90	109	50
Mohnen (1977)	1.40	1.90	130	100
Hussin et al. (1983)	1.15	1.39	140	101
Porstendörfer et al. (1983)	1.15	1.39	140	101
Wen et al. (1984)	1.40	1.90	130	130
Hoppel et Frick (1986)	1.20	1.35	150	90
Wiedensohler et al. (1986)	1.35	1.60	148	130
Hoppel et Frick (1990)	1.33	1.84	200	100
Wiedensohler et Fissan (1991)	1.40	1.60	140	101
Reischl et al. (1996)	1.15	1.425	290	140

Figure 2.12: Fraction de charges $\phi(p = 1, x)$ en fonction du diamètre des particules x pour différentes propriétés ioniques définies dans le tableau 2.2.

Les modèles de Wiedensohler et Gunn

Wiedensohler propose une expression empirique de la loi de charges pour des particules de diamètre x portant au maximum $p = 2$ charges en se basant sur le modèle de Fuchs. Pour cette approximation, masses et mobilités électriques des ions sont tirées des travaux de [Hussin et al., 1983] et de [Wiedensohler et al., 1986] pour une probabilité de collision extraite de [Hoppel and Frick, 1986]. Sur la base de ces choix, Il exprime ϕ moyennant certaines conditions sur le couple (x, p) :

$$I_1 = [(x, p), p = -1, 0, 1], I_2 = [(x, p), x \in [20 \text{ nm}, 1 \mu\text{m}], p = -2, 2].$$

2.2 Modèle de réponse du SMPS

Si $(x, p) \in I_1 \cup I_2$, alors

$$\phi(p, x) = 10^{\sum_{i=0}^5 a_i(p)(\log(x))^i}. \quad (2.43)$$

NB : les diamètres x doivent être exprimés en nm.

Les coefficients $a_i(p)$ sont obtenus par une méthode de régression aux moindres carrés et sont répertoriés dans le tableau 2.3. En ce qui concerne le modèle développé par *Gunn*, il ne s'applique que pour les

Tableau 2.3: Valeur des coefficients $a_i(p)$ de l'équation (2.43) calculés par *Wiedensohler et al.* (1988).

p	$a_0(p)$	$a_1(p)$	$a_2(p)$	$a_3(p)$	$a_4(p)$	$a_5(p)$
-2	-26.3328	35.9044	-21.4608	7.0867	-1.3088	0.1051
-1	-2.3197	0.6175	0.6201	-0.1105	-0.126	0.0297
0	-0.0003	-0.1014	0.3073	-0.3372	0.1023	-0.0105
1	-2.3484	0.6044	0.48	0.0013	-0.1553	0.032
2	-44.4756	79.3772	-62.89	26.4492	-5.478	0.5049

particules portant au minimum $p = 3$ charges. Ce modèle est basé sur les expériences qu'il mena sur les poussières de silice notamment. Partant des équations de base d'électrification des aérosols, il donne l'expression suivante pour ϕ :

$$\phi(p, x) = \sqrt{\frac{1}{2\pi\theta}} \exp \left(-\frac{\left(p - \theta \ln \left(\frac{c_I^+}{c_I^-} \frac{Z_I^+}{Z_I^-} \right) \right)^2}{2\theta} \right), \quad (2.44)$$

avec $\theta = \frac{2\pi\epsilon_0 x k_b T}{e^2}$, où ϵ_0 est la constante diélectrique du vide.

Le modèle approche ϕ par une distribution gaussienne, symétrique par rapport à l'axe $p = 0$ (particule neutre), sous la condition $\left(\frac{c_I^+}{c_I^-} \frac{Z_I^+}{Z_I^-} \right) = 1$. Cependant, les ions positifs et négatifs ont des comportements qui diffèrent en terme de mobilité électrique notamment. *Wiedensohler* propose les estimations suivantes pour le rapport des concentrations et des mobilités électriques entre les ions positifs et les ions négatifs : $\frac{Z_I^+}{Z_I^-} = 0.875$ et $\frac{c_I^+}{c_I^-} = 1$. La différence en terme de concentration est considérée comme négligeable et les ions négatifs sont plus mobiles que les ions positifs.

RESUME

Le modèle de *Fuchs* décrit en section 2.2.1 s'avère plus complexe et plus difficile à mettre en œuvre que les modèles préconisés par la norme relative à la détermination de la distribution granulométrique par analyse différentielle de mobilité électrique. Néanmoins, le modèle est plus complet et offre une meilleure représentation de la physique associée à l'acquisition de charges par les particules d'aérosol en milieu ionique bipolaire d'où le choix de ce modèle pour l'expression de la loi de charges. Les propriétés ioniques choisies sont celles décrites par [Reischl et al., 1996] et le modèle adopté considère les modifications apportées par [Hoppel and Frick, 1986] au modèle de *Fuchs* pour la probabilité de collision ions/particules.

2.2.2 Modélisation de la fonction de transfert du DMA

Fonction de transfert du DMA

Une fonction de transfert en mathématique est une fonction reliant l'entrée et la sortie d'un système. La fonction de transfert du DMA, noté ω , représente la probabilité qu'une particule de diamètre x

portant p charges lorsque soumise au champ électrique \vec{E} à l'intérieur de la colonne du classificateur électrostatique soit sélectionnée. Dans cette partie, 3 modèles sont explicités. Le premier modèle considère un champ électrique \vec{E} fixé, on parle alors de modèle statique alors que le deuxième modèle considère cette fois un champ électrique $\vec{E}(t)$ évoluant au cours de la mesure, comme c'est le cas pour le SMPS. Pour finir, le dernier modèle présente le modèle choisi qui couple à la fois les aspects dynamiques liés à l'évolution du champ électrique mais aussi la diffusion des particules à travers la colonne du classificateur électrostatique qui était négligée dans les précédents modèles. Il est à noter que les équations du modèle sont adaptées aux DMA axiaux : les particules entrent dans la colonne suivant un flux axial et les particules chargées migrent selon la direction radiale vers la zone de collection.

Fonction de transfert idéale pour un champ électrique stationnaire

[Knutson and Whitby, 1975b] [Knutson and Whitby, 1975a] ont montré qu'en négligeant la diffusion, les particules traversent la colonne selon des trajectoires pour lesquelles la fonction de courant des particules Γ est constante :

$$\Gamma(r, z) = \Psi_\omega + Z_d \Phi_\omega, \quad (2.45)$$

où ψ_ω est la fonction courant du gaz porteur définissant les composantes axiales et radiales de la vitesse du gaz u_z et u_r par :

$$\begin{cases} u_z = -\frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_\omega}{\partial r}, \\ u_r = \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi_\omega}{\partial z}. \end{cases} \quad (2.46)$$

Partant des équations définies en (2.46), la fonction courant ψ_ω peut être réécrite sous la forme suivante :

$$\Psi_\omega = \int_{r,z} (ru_r dz - ru_z dr). \quad (2.47)$$

La fonction flux électrique ϕ_ω est liée quant-à elle au champ électrique E appliqué à l'électrode centrale du DMA dont les composantes axiale E_z et radiale E_r sont données par les relations :

$$\begin{cases} E_z = -\frac{1}{r} \frac{\partial \Phi_\omega}{\partial r}, \\ E_r = \frac{1}{r} \frac{\partial \Phi_\omega}{\partial z}. \end{cases} \quad (2.48)$$

Comme pour la fonction courant, la fonction flux électrique se réécrit :

$$\Phi_\omega = \int_{r,z} (rE_r dz - rE_z dr). \quad (2.49)$$

Le champ électrique étant uniforme entre les deux électrodes, $E_z = 0$ et $E_r = \frac{U}{r \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)}$. De plus, le flux d'air filtré entraînant les particules est supposé laminaire dans la direction axiale, sa vitesse radiale est donc nulle ($u_r = 0$). Ces hypothèses ajoutées au fait que Γ est constante sont utilisées par [Knutson and Whitby, 1975b] pour définir la fonction de transfert du DMA dans le cas statique. En notant β et δ les 2 ratios de flux tels que :

$$\beta = \frac{Q_a + Q_m}{Q_{sh} + Q_{ex}}, \quad \delta = \frac{Q_m - Q_a}{Q_m + Q_a}, \quad (2.50)$$

ils donnent l'expression de ω en fonction de la mobilité nominale d'extraction Z^* pour une tension considérée par l'équation suivante :

$$\omega(Z, Z^*) = \max \left\{ 0, \min \left[1, \frac{\frac{Z}{Z^*} + \beta - 1}{\beta - \beta\delta}, \frac{1 + \beta - \frac{Z}{Z^*}}{\beta - \beta\delta} \right] \right\}. \quad (2.51)$$

Fonction de transfert idéale pour un champ électrique non-stationnaire

Dans le cas dynamique, autrement dit pour un champ électrique évoluant continuellement au cours du temps, il s'agit de définir comment les particules d'aérosol vont migrer vers la zone de collection. La valeur du champ électrique est obtenue par résolution des équations de Maxwell en annexe A et son expression dépend encore une fois uniquement de sa valeur radiale au cours du temps :

$$E(r, t) = -\frac{U(t)}{\ln(\frac{r_2}{r_1})r}. \quad (2.52)$$

La mobilité électrique Z est définie par les équations (2.17) et (2.19), où v_e est la vitesse limite atteinte après une période d'accélération. Supposons cette période d'accélération négligeable, ainsi la vitesse dite limite est atteinte dès l'entrée des particules dans le champ électrique. Notons alors $r(t)$ la position radiale d'une particule à l'intérieur du DMA à l'instant t . Par construction, $r(t = t_0)$ est défini comme la position radiale de la particule à l'entrée de la colonne du DMA. En dérivant $r(t)$, on a :

$$\frac{dr}{dt} = ZE(r, t) = -Z \frac{U(t)}{\ln(\frac{r_2}{r_1})r(t)}. \quad (2.53)$$

L'équation différentielle définie par (2.53) avec la condition initiale $r(t = t_0) = r_0$ a pour solution :

$$r^2(t) = r_0^2 - 2 \frac{Z}{\ln(\frac{r_2}{r_1})} \int_{t_0}^t U(\zeta) d\zeta. \quad (2.54)$$

Soit t_f le temps de résidence de la particule à l'intérieur de la colonne DMA défini comme égal au temps de résidence de l'aérosol à l'intérieur de la colonne :

$$t_f = \frac{\pi(r_2^2 - r_1^2)L}{Q_{sh} + Q_a}, \quad (2.55)$$

alors

$$r^2(t_0 + t_f) = r_0^2 - 2 \frac{Z}{\ln(\frac{r_2}{r_1})} \int_{t_0}^{t_0+t_f} U(\zeta) d\zeta, \quad (2.56)$$

et par conséquent, la mobilité électrique est telle que :

$$Z = \frac{\ln(\frac{r_2}{r_1})}{2 \int_{t_0}^{t_0+t_f} U(\zeta) d\zeta} (r_0^2 - r^2(t_0 + t_f)). \quad (2.57)$$

Connaissant l'expression de la mobilité électrique, la suite consiste à étudier les trajectoires limites de sélection des particules entrantes dans la colonne pour une position radiale donnée.

Soient Δ_{inl} et Δ_{out} respectivement les largeurs des tubes d'entrée et d'extraction de la colonne DMA présentés sur la figure 2.13 en annexe. Une particule est sélectionnée si et seulement si $r_1 < r(t_0 + t_f) < r_1 + \Delta_{inl}$. 4 configurations sont alors étudiées. Les figures 2.13 et 2.14 montrent respectivement un schéma simplifié de la colonne du DMA ainsi que les 4 configurations correspondant aux trajectoires limites.

Les 4 configurations illustrées graphiquement sur la figure 2.14 sont traduites numériquement par les conditions aux limites suivantes :

Configuration 1

$$\begin{cases} r_0 = r_2, \\ r(t_0 + t_f) = r_1 + \Delta_{out}, \end{cases} \quad (2.58)$$

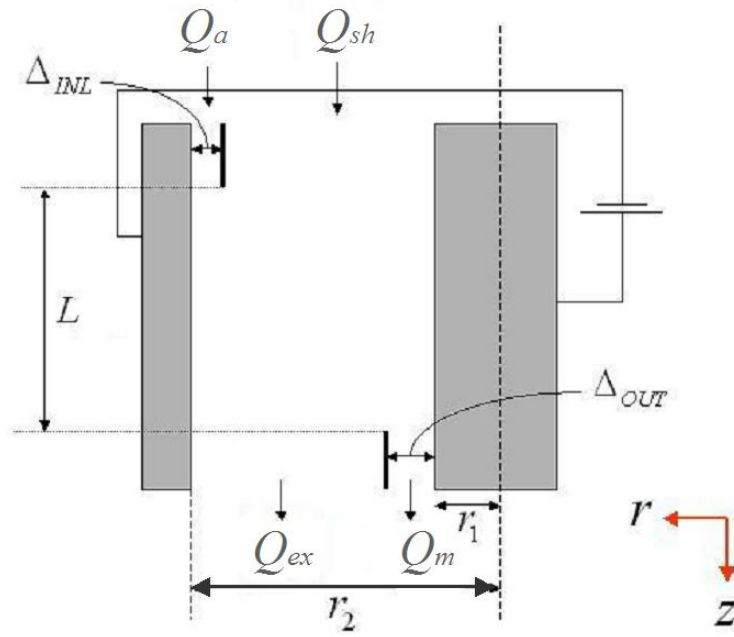


Figure 2.13: Schéma simplifié de la colonne DMA.

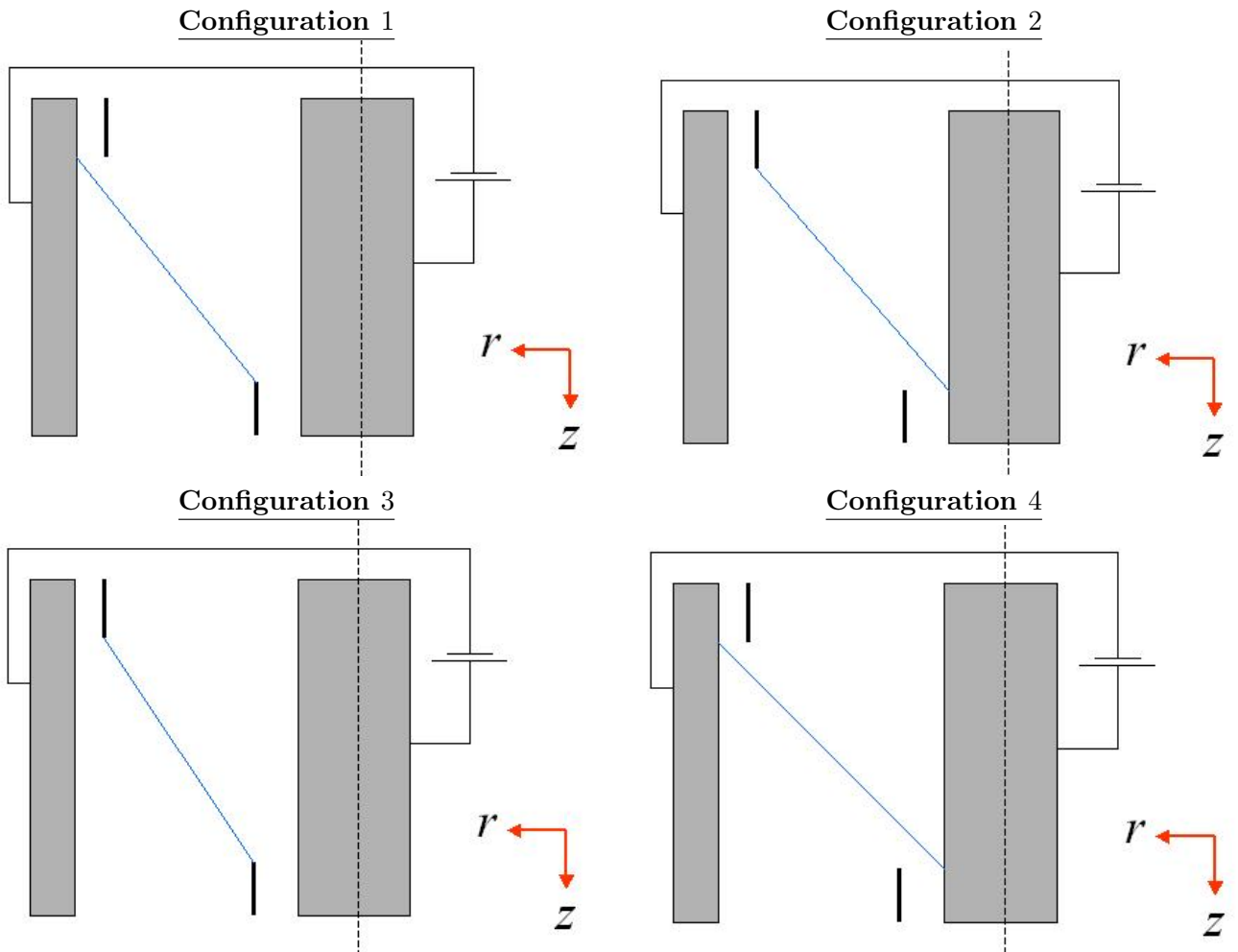


Figure 2.14: Illustration des 4 trajectoires limites à l'intérieur de la colonne du DMA.

Configuration 2

$$\begin{cases} r_0 = r_2 - \Delta_{inl}, \\ r(t_0 + t_f) = r_1, \end{cases} \quad (2.59)$$

Configuration 3

$$\begin{cases} r_0 = r_2 - \Delta_{inl}, \\ r(t_0 + t_f) = r_1 + \Delta_{out}, \end{cases} \quad (2.60)$$

Configuration 4

$$\begin{cases} r_0 = r_2, \\ r(t_0 + t_f) = r_1. \end{cases} \quad (2.61)$$

Il s'agit de résoudre l'équation (2.57) pour chacune des configurations. Nous ne détaillons que la configuration 1, la résolution est alors similaire pour les 3 autres cas.

Pour commencer, il est intéressant de remarquer que :

$$(r_0^2 - r^2(t_0 + t_f)) = (r_2^2 - (r_1 + \Delta_{inl})^2), \quad (2.62)$$

$$= \frac{(Q_{sh} + Q_a - Q_m + Q_{ex})}{2\pi v_1}. \quad (2.63)$$

En posant $\langle U \rangle = \frac{1}{t_f} \int_{t_0}^{t_0+t_f} U(\zeta) d\zeta$, qui n'est autre que la tension moyenne pour un passage dans la colonne DMA, on obtient

$$Z_1 = \frac{\ln(\frac{r_2}{r_1})(Q_{sh} + Q_a - Q_m + Q_{ex})}{4 \langle U \rangle \pi t_f v_1}. \quad (2.64)$$

En posant $L = t_f v_1$ ($= t_f v_2 = t_f v_3 = t_f v_4$ pour les autres configurations), on a :

$$Z_1 = \frac{\ln(\frac{r_2}{r_1})(Q_{sh} + Q_a - Q_m + Q_{ex})}{4 \langle U \rangle \pi L}. \quad (2.65)$$

En procédant de la même manière, on obtient pour les configurations 2, 3 et 4 :

$$Z_2 = \frac{\ln(\frac{r_2}{r_1})(Q_{sh} - Q_a - Q_m + Q_{ex})}{4 \langle U \rangle \pi L}, \quad (2.66)$$

$$Z_3 = \frac{\ln(\frac{r_2}{r_1})(Q_{sh} + Q_a + Q_m + Q_{ex})}{4 \langle U \rangle \pi L}, \quad (2.67)$$

$$Z_4 = \frac{\ln(\frac{r_2}{r_1})(Q_{sh} - Q_a + Q_m + Q_{ex})}{4 \langle U \rangle \pi L}. \quad (2.68)$$

Les mobilités électriques sont alors établies sous les hypothèses suivantes :

1. Quasi-stationnarité du système
2. Vitesse limite v_e atteinte instantanément
3. Débits choisis tels que les vitesses v_1, v_2, v_3, v_4 soient constantes et égales à $\frac{L}{t_f}$
4. Profil de vitesse uniforme à l'intérieur de la colonne DMA

Sous les hypothèses définies ci-dessus, la fonction de transfert du DMA est déduite :

$$\omega(p, x, t) = \begin{cases} 0 & , Z_u(\bar{U}(t)) \leq Z_3, Z_u(\bar{U}(t)) \geq Z_2, \\ \frac{1}{Q_a} \left[\frac{Z_d(p, x)}{Z_u(\bar{U}(t))} - (Q_{sh} - Q_m) \right] & , Z_3 \leq Z_u(\bar{U}(t)) \leq \min(Z_1, Z_4), \\ \min\left(1, \frac{Q_m}{Q_a}\right) & , \min(Z_1, Z_4) \leq Z_u(\bar{U}(t)) \leq \max(Z_1, Z_4), \\ \frac{1}{Q_a} \left[Q_{sh} + Q_a - \frac{Z_d(p, x)}{Z_u(\bar{U}(t))} \right] & , \max(Z_1, Z_4) \leq Z_u(\bar{U}(t)) \leq Z_2, \end{cases} \quad (2.69)$$

sachant que la tension moyenne pour un passage dans la colonne du DMA $\bar{U}(t)$ est définie à partir de l'équation (2.25) comme :

$$\begin{aligned}\bar{U}(t) &= \frac{1}{t_f} \int_{t-t_d-t_f}^{t-t_d} U(t') dt' \\ &= \frac{1}{t_f} \int_{t-t_d-t_f}^{t-t_d} U_{min} \exp\left(\frac{t'}{t_s} \ln\left(\frac{U_{max}}{U_{min}}\right)\right) dt', \\ &= \frac{U_{min}\tau}{t_f} \exp\left(\frac{t-t_d}{t_f}\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{t_f}{\tau}\right)\right),\end{aligned}\tag{2.70}$$

avec τ tel que :

$$\tau = \frac{t_s}{\ln\left(\frac{U_{max}}{U_{min}}\right)}.\tag{2.71}$$

La tension moyenne calculée en (2.70) prend en compte le retard entre sélection et détection des particules, en effet, une particule dénombrée par le CNC au temps t a en réalité été sélectionnée par le DMA dans l'intervalle de temps $[t - t_d - t_f, t - t_d]$ en modélisant par la variable t_d le temps de transport des particules entre la sortie de la colonne et l'entrée dans la chambre de détection du CNC (plus couramment nommé temps de plomberie). L'équation définissant la fonction de transfert en (2.69) rejoint la formulation réalisée par [Wang and Flagan, 1990] qui furent les premiers à justifier la conservation de la forme de la fonction de transfert pour un champ électrique suivant une rampe exponentielle, lançant ainsi le développement du mode scanning du DMA qui permet aujourd'hui d'obtenir une estimation de la DGN d'un aérosol en moins d'une minute. Suite à ces développements, [Collins et al., 2004] proposèrent une approche par simulations de Monte-Carlo de la trajectoire des particules à l'intérieur de la colonne lorsque le champ électrique suit une rampe exponentielle et montrèrent des distorsions de la fonction de transfert par rapport à sa forme triangulaire idéale. Ils imputèrent alors ces distorsions aux ratios des temps $\frac{t_f}{\tau}$, des débits $\frac{Q_{sh}}{Q_a}$ et au calcul du temps t_d . Ils furent ensuite repris par [Mamakos et al., 2008] qui dérivèrent une expression analytique de la fonction de transfert basée sur le calcul d'une solution analytique pour les trajectoires des particules non diffusives à l'intérieur du DMA. Contrairement à Wang et Flagan qui assument un écoulement dit piston⁶, ils choisissent un écoulement laminaire complètement développé à l'intérieur de la colonne du classificateur. Les approches proposées dans cette section négligent toutefois une propriété importante qui est la diffusion des particules de faibles diamètres lors de la sélection. La section suivante décrit les modèles permettant d'intégrer cet aspect.

Fonction de transfert diffusive

Si le transport convectif est prédominant pour les particules dont le diamètre dépasse quelques centaines de nanomètres, dès lors que la taille des particules décroît, le transport diffusif prend progressivement le pas. Le nombre de *Peclet* sans dimension Pe est généralement utilisé pour caractériser l'impact de la diffusion. Il est défini comme le ratio entre la mobilité et la diffusion des particules en terme de flux (le flux électrophorétique des particules divisé par le flux diffusif des particules) lors de la phase de sélection par mobilité électrique. On rappelle que D est défini par l'équation 2.7 :

$$D = \frac{k_b T C_c(x)}{3\pi\eta x} = \frac{k_b T}{pe} Z_d.\tag{2.72}$$

⁶L'écoulement piston modélise un écoulement turbulent limite où la vitesse globale est primordiale par rapport aux tourbillons qui ne font qu'assurer l'homogénéité transversale de la veine fluide. Il est caractérisé par une progression du fluide en tranches parallèles et indépendantes, sans échange de matière, la diffusion axiale étant négligeable, à la manière d'un piston dans un cylindre.

2.2 Modèle de réponse du SMPS

Pour une tension fixée U et donc une intensité du champ électrique E , Pe est alors calculé pour un DMA cylindrique [Flagan, 1999] comme suit :

$$Pe = \frac{(r_2 - r_1)v_e}{D}, \quad (2.73)$$

$$= \frac{pe(r_2 - r_1)E}{k_b T}, \quad (2.74)$$

$$= \frac{peU}{k_b T} \frac{1 - \frac{r_1}{r_2}}{\ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)}. \quad (2.75)$$

Ce paramètre est surtout utilisé pour la comparaison des performances des DMA. Les premiers à observer les pertes par diffusion et les effets d'élargissement occasionnés sur la fonction de transfert du DMA furent [Kousaka and Okuyama, 1985] qui utilisèrent 2 DMA connectés en série (on parle alors d'un système de tandem-DMA). Ils proposèrent alors un autre indicateur de l'impact de la diffusion qui est le ratio entre les effets de la diffusion brownienne, modélisés par le terme \bar{D} et le mouvement électrostatique des particules en mouvement dans le classificateur représenté par le paramètre \bar{E} :

$$\frac{\bar{D}}{\bar{E}} = \frac{\left[\frac{DL}{r_1^2 \left(\frac{Q_{sh} + Q_a}{\pi(r_1^2 - r_2^2)} \right)} \right]}{\left[\frac{Z_u LU}{r_1^2 \left(\frac{Q_{sh} + Q_a}{\pi(r_1^2 - r_2^2)} \right) \ln\left(\frac{r_1}{r_2}\right)} \right]} = \frac{2\pi LD}{Q_{sh}}. \quad (2.76)$$

Cet indicateur est déterminé à partir de l'équation de convection-diffusion brownienne décrite en (2.11) adimensionnée dans le cas stationnaire. Toutefois, l'intérêt étant la détermination de la fonction de transfert avec prise en compte de la diffusion brownienne des particules à travers la colonne du DMA, il s'agit de résoudre l'équation traduisant le mouvement des particules à l'intérieur de la zone de sélection. L'équation traduisant ce déplacement est donnée par [Otto et al., 1996] par l'équation aux dérivés partielles suivante :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla(D\nabla c) - \nabla(\vec{v}_e c) - \nabla(\vec{u}c), \quad (2.77)$$

qui n'est autre que l'équation de convection-diffusion brownienne avec ajout du terme relatif à la migration des particules dans le champ électrique $\nabla(\vec{v}_e c)$. Stolzenburg proposa tout d'abord de simplifier l'équation (2.77) en considérant un gaz porteur incompressible, de flux laminaire et un champ électrique stationnaire de profil axial uniforme sur toute la longueur L de la colonne. Ces conditions assurent : une vitesse du flux d'air filtré exprimée uniquement sur sa composante axiale u_z , une vitesse électrophorétique des particules exprimée uniquement sur sa composante radiale $v_e(r)$ de sorte que l'équation (2.77) se réécrive sous la forme :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} + D \frac{\partial^2 c}{\partial r^2} - u_z(r) \frac{\partial c}{\partial z} - \frac{\partial c}{\partial r} \left(\frac{Z_d U}{r \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} - \frac{D}{r} \right). \quad (2.78)$$

Il est à noter que l'expression de u_z dépend des hypothèses réalisées concernant le gaz porteur. Dans le cas d'un écoulement piston, sa valeur est constante et égale à :

$$u_z(r) = \left(\frac{Q_{sh} + Q_a}{\pi(r_2^2 - r_1^2)} \right), \quad (2.79)$$

alors que pour un écoulement laminaire complètement développé, [Kerouanton et al., 1996] donne l'expression suivante de u_z :

$$u_z(r) = A_1 r^2 + A_2 \ln(r) + A_3, \quad (2.80)$$

$$\begin{cases} A_1 = -\frac{2(Q_{sh}+Q_a)}{\pi \left(r_2^4 - r_1^4 - \frac{(r_2^2 - r_1^2)^2}{\ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \right)}, \\ A_2 = A_1 \frac{r_2^2 - r_1^2}{\ln\left(\frac{r_1}{r_2}\right)}, \\ A_3 = -A_1 r_2^2 - A_2 \ln(r_2). \end{cases}$$

La résolution de l'équation (2.78) par [Stolzenburg, 1988] donnée en annexe B établit l'expression de la fonction de transfert diffusive pour une tension fixée U . Partant de cette expression, nous considérons une valeur moyenne de la tension pour un passage dans la colonne du DMA $\bar{U}(t)$ pour laquelle on détermine une fonction de transfert ce qui permet de conserver l'hypothèse de champ stationnaire faite par Stolzenburg et ainsi pour le modèle générale défini par l'équation (2.22) de pouvoir déterminer une fonction de transfert diffusive moyenne relative à un temps de comptage :

$$\omega(p, x, t) = \frac{\tilde{\sigma}}{\sqrt{2}\beta(1-\delta)} \left\{ \epsilon \left(\frac{\frac{Z_d(p, x)}{Z_u(\bar{U}(t))} - (1+\beta)}{\sqrt{2}\tilde{\sigma}} \right) + \epsilon \left(\frac{\frac{Z_d(p, x)}{Z_u(\bar{U}(t))} - (1-\beta)}{\sqrt{2}\tilde{\sigma}} \right) - \right. \quad (2.81)$$

$$\left. \epsilon \left(\frac{\frac{Z_d(p, x)}{Z_u(\bar{U}(t))} - (1+\beta\delta)}{\sqrt{2}\tilde{\sigma}} \right) - \epsilon \left(\frac{\frac{Z_d(p, x)}{Z_u(\bar{U}(t))} - (1-\beta\delta)}{\sqrt{2}\tilde{\sigma}} \right) \right\},$$

où les paramètres β et δ sont décrits dans l'équation 2.50.

Le déplacement diffusif des particules à l'intérieur de la colonne $\tilde{\sigma}$ est alors évalué comme une intégrale le long de la trajectoire de migration des particules dans la colonne. Il est donné de la façon suivante :

$$\tilde{\sigma} = \sqrt{G \frac{Z_d(p, x)}{Z_u(\bar{U}(t))} \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right) \frac{k_b T}{pe\bar{U}(t)}}, \quad (2.82)$$

où G est le facteur géométrique défini par la relation :

$$G = \frac{4(1+\beta)^2}{1 - \frac{r_1^2}{r_2^2}} \left[I\left(\frac{r_1^2}{r_2^2}\right) + \left(\frac{r_2^2 - r_1^2}{2(1+\beta)Lr_2} \right)^2 \right]. \quad (2.83)$$

La fonction I dépend du profil de vitesse, son expression diffère donc en fonction du type d'écoulement considéré. Soient I_p et I_f les fonctions pour un écoulement piston et un écoulement laminaire complètement développé, alors :

$$\begin{cases} I_p(x) = \frac{1+x}{2}, \\ I_f(x) = \frac{\frac{1}{4}(1-x^2)(1-x)^2 + \frac{5}{18}(1-x^3)(1-x)\ln(x) + \frac{1}{12}(1-x^4)\ln^2(x)}{(1-x)\left[-\frac{1}{2}(1+x)\ln(x) - (1-x)\right]^2}, \end{cases} \quad (2.84)$$

et enfin $\epsilon(x)$ est l'intégrale de la fonction d'erreur de Gauss notée erf :

$$\epsilon(x) = \int_0^x erf(u) du = x erf(x) + \frac{1}{\sqrt{\pi}} \exp(-x^2). \quad (2.85)$$

La figure 2.15 illustre l'évolution des fonctions de transfert idéale et diffusive pour différentes valeurs des diamètres de mobilité électrique. Hauteur et largeur de la fonction de transfert diffusive tendent vers les valeurs prises par la fonction de transfert idéale lorsque le diamètre des particules considérées augmentent. La diffusion devient négligeable à partir de quelques centaines de nanomètres. Stolzenburg fût donc le premier à développer une équation semi-analytique pour l'expression de la fonction de transfert du DMA avec prise en compte de la diffusion brownienne. Cette approche

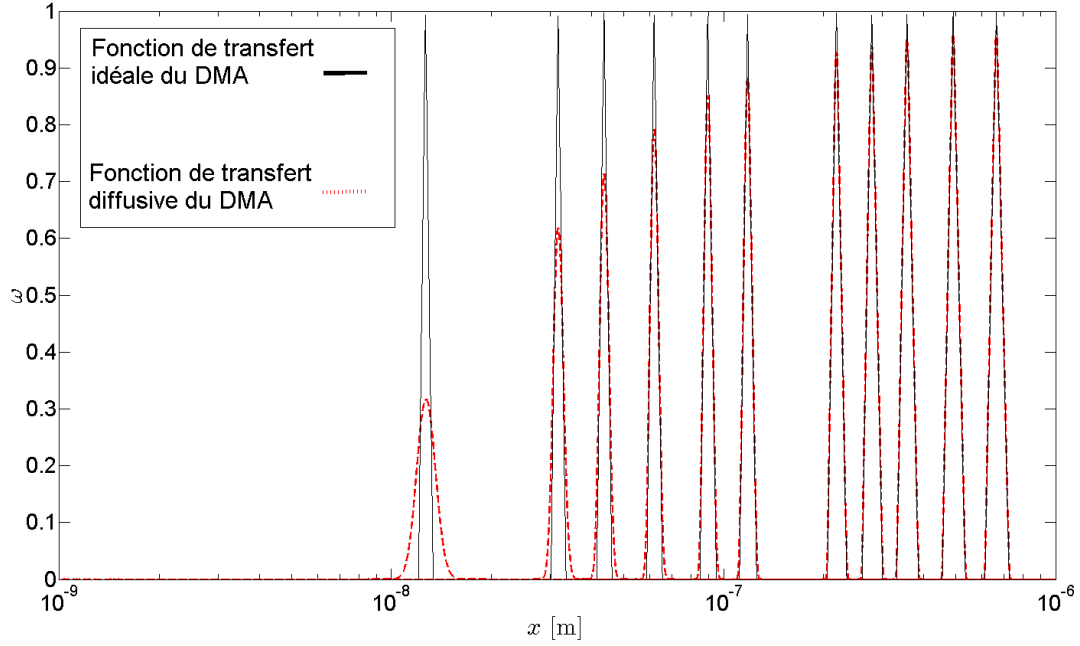


Figure 2.15: Fonction de transfert diffusive et non diffusive pour différentes valeurs du diamètre de mobilité électrique.

est la plus couramment utilisée pour représenter ω . Cela s'explique surtout par sa facilité de mise en œuvre ainsi que par le nombre d'auteurs qui l'ont validé numériquement et expérimentalement. Certains comme [Hagwood et al., 1999] ont considéré une approche de type Monte-Carlo en simulant les trajectoires aléatoires des particules soumises au mouvement brownien à l'intérieur de la colonne. Ils démontrèrent que la théorie de *Stolzenburg* qui ne prend pas en compte les pertes par diffusion sur les parois restait valide pour les particules dont le diamètre dépassait environ 10 nm. Plus tard, [Mamakos et al., 2007] emploie une méthode par différences finies au 4^{ème} ordre afin de résoudre numériquement l'équation (2.77) et confirme la théorie de *Stolzenburg*. Ces études théoriques ont été corroborées par des études expérimentales, notamment une étude récente [Jiang et al., 2011] comparant les performances de 5 DMA qui concède un bon accord entre les prédictions de *Stolzenburg* pour des particules d'un diamètre allant jusqu'à 1.16 nm ce qui dépasse même les réserves théoriques faites initialement par *Hagwood et al.*. Une autre méthode consiste à paramétrer la fonction de transfert en utilisant généralement 2 paramètres correspondant respectivement aux deux principaux effets de la diffusion : d'une part, les pertes de particules dues aux connections par tuyaux notamment à l'entrée de la colonne DMA réduisant ainsi l'aire de la fonction de transfert, et d'autre part, l'élargissement des trajectoires des particules à l'intérieur de la colonne qui augmente la largeur de la fonction de transfert. Différents auteurs comme [Birmili et al., 1997], [Fissan et al., 1998] ou [Martinsson et al., 2001] se sont ainsi intéressés expérimentalement à ces deux paramètres qui sont le coefficient d'élargissement α_{el} et de pénétration α_{pen} . Ainsi, la fonction de transfert incluant le comportement diffusif des particules peut s'exprimer en fonction de ces deux paramètres de la façon suivante :

$$\omega(p, x, t) = \begin{cases} \alpha_{el}\alpha_{pen} \left[1 + \alpha_{el} \frac{Q_m}{Q_a} \left(\frac{Z_d(p, x)}{Z_u(U(t))} - 1 \right) \right] & , 1 - \frac{Q_a}{\alpha_{el}Q_m} \leq \frac{Z_d(p, x)}{Z_u(U(t))} \leq 1 \\ \alpha_{el}\alpha_{pen} \left[1 + \alpha_{el} \frac{Q_m}{Q_a} \left(1 - \frac{Z_d(p, x)}{Z_u(U(t))} \right) \right] & , 1 \leq \frac{Z_d(p, x)}{Z_u(U(t))} \leq 1 + \frac{Q_a}{\alpha_{el}Q_m} \\ 0 & , \text{sinon.} \end{cases} \quad (2.86)$$

Coefficients de pénétration et d'élargissement sont en général déduits d'expériences pour une taille donnée de particules et donc pour une tension fixée. En effet, partant du modèle théorique décrit par la relation (2.86), une méthode d'optimisation permet de définir les valeurs optimales de α_{el} et α_{pen} pour des expériences spécifiques. Il n'existe pas à notre connaissance aujourd'hui de définition pour ces paramètres qui restent valides pour tout type d'instruments et d'aérosols.

RESUME

Comme décrit dans l'équation générale du modèle donnée en 2.22, la fonction de transfert du DMA est moyennée sur un temps de comptage des particules relatif à chaque canal. Pendant cet intervalle de temps, on considère une valeur moyenne du champ électrique appliquée lors de la sélection des particules sous-entendant la connaissance des temps de plomberie et de résidence à l'intérieur de la colonne du DMA, respectivement t_d et t_f (ces deux paramètres permettent de prendre en considération le temps de retard du système correspondant au temps de transport des particules à travers le DMA et entre la sortie du DMA et la chambre de détection du CNC). Il est à noter que contrairement à [Russell et al., 1995] qui considère une distribution des temps de transfert, les valeurs décrites dans le modèle sont scalaires. Pour chaque canal, le champ électrique est donc considéré constant, ainsi, le modèle de *Stolzenburg* peut être utilisé car il part de l'hypothèse d'un champ électrique stationnaire et uniforme le long de la colonne pour sa définition de ω . Nous choisissons d'intégrer la théorie de *Stolzenburg* pour plusieurs raisons : cette approche a été validée par de nombreux auteurs aussi bien théoriquement que sur des données expérimentales, cette approche est rapide à mettre en œuvre et reste valide sur l'ensemble de la gamme de mesure de l'instrument. Les techniques de simulation de Monte-Carlo qui modélisent les trajectoires des particules soumises à la diffusion brownienne sont coûteuses en temps de calcul et ne sont pas considérées ici. En effet, sachant que la problématique est l'incertitude de mesure associée à la mesure par SMPS, un appel au modèle de mesure ne peut pas se permettre de nécessiter trop de temps CPU car de tels appels peuvent être répétés des milliers de fois comme nous le verrons dans le dernier chapitre. De plus, sachant que l'estimation de la granulométrie est obtenue après une procédure d'inversion qui consiste en la minimisation d'un critère comme nous le verrons dans le chapitre 2, il est important de s'assurer que ce critère n'est pas entachée de l'incertitude associée au nombre fini de simulations nécessaires à la création de la fonction de transfert du DMA. Nous rejetons par la même occasion la technique qui consiste à paramétrer la fonction de transfert par les paramètres d'élargissements et de pénétration car il est difficile de définir des valeurs restant valides pour tout aérosol et tout instrument alors que l'approche de *Stolzenburg* fait consensus dans le domaine.

2.2.3 Le modèle pour l'expression de l'efficacité de détection du compteur

Contrairement aux modèles présentés dans les sections 2.2.1 et 2.2.2, l'efficacité de détection du compteur (spécifique à chaque instrument) n'est pas modélisée mais bien mesurée. Dans cette partie, nous considérons les 3 modèles de CNC les plus couramment utilisés : les modèles TSI 3022, TSI 3010 et TSI 3025. Caractériser les performances de chaque compteur revient à évaluer l'efficacité de détection en fonction du diamètre des particules.

L'efficacité de détection de chacun des compteurs considérés a été calculée en utilisant la méthode d'étalonnage développée par [Liu and Pui, 1974]. Dans cette méthode, le CNC à calibrer et un électromètre aérosol (servant de référence) mesurent simultanément la concentration en nombre de particules d'un aérosol monodispersé (un aérosol de composition particulière est généré, par exemple à base de particules d'argent, et passe ensuite par le classificateur DMA opérant en mode stepping à une tension fixée correspondant à un seul diamètre). Le ratio des concentrations mesurées par le CNC sur celles mesurées par l'électromètre pour le diamètre considéré donne l'efficacité de détection du CNC à ce diamètre. L'opération est enfin répétée pour un nombre de points pour lesquels une évaluation de l'efficacité est souhaitée.

La figure 2.16 montre les courbes d'efficacité pour les 3 compteurs. Les CNC sont caractérisés généralement par leur diamètre de coupure qui est le diamètre à partir duquel 50% des particules sont détectées. Pour le modèle 3022, ce diamètre possède une valeur aux alentours de 7 nm, contre 11 nm pour le modèle 3010 et 4 nm pour le modèle 3025.

La fonction ν entrant dans la définition des fonctions noyaux de l'équation (2.23) est alors obtenue par interpolation linéaire entre les points expérimentaux. Nous ne proposons aucune modélisation pour

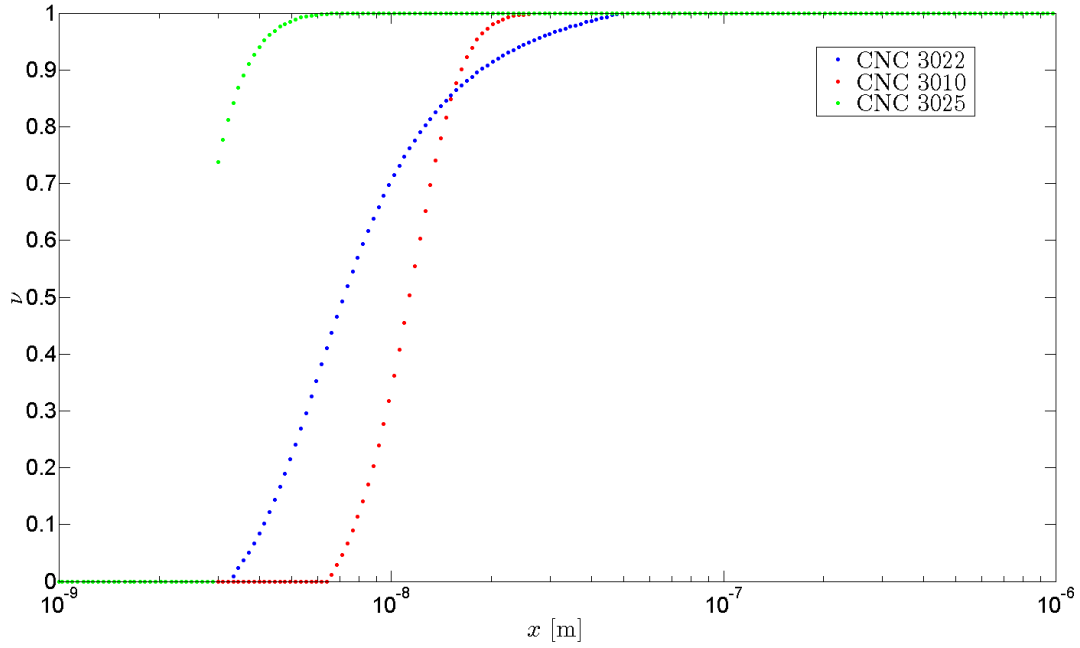


Figure 2.16: Efficacité de détection ν en fonction des diamètres x pour 3 modèles de CNC utilisés au LNE et à l'IRSN.

la définition de cette fonction, elle est simplement déduite des expériences. En effet, un tel modèle viendrait augmenter le nombre de paramètres intervenant dans la définition des fonctions noyaux et complexifier le modèle de réponse de l'instrument.

Toutefois, de nombreux auteurs se sont intéressés aux effets induits par certains paramètres sur cette fonction.

[Mertes et al., 1995] ont montré l'influence de la différence de température entre condenseur et saturateur sur l'efficacité de détection du CNC 3010. [Ankilov et al., 2002] lors d'une intercomparaison en 2002 ont quant-à eux mis en évidence la dépendance de l'efficacité de détection par rapport à la composition de l'aérosol étudié. La figure 2.17 propose les résultats publiés par Ankilov et al. des mesures par

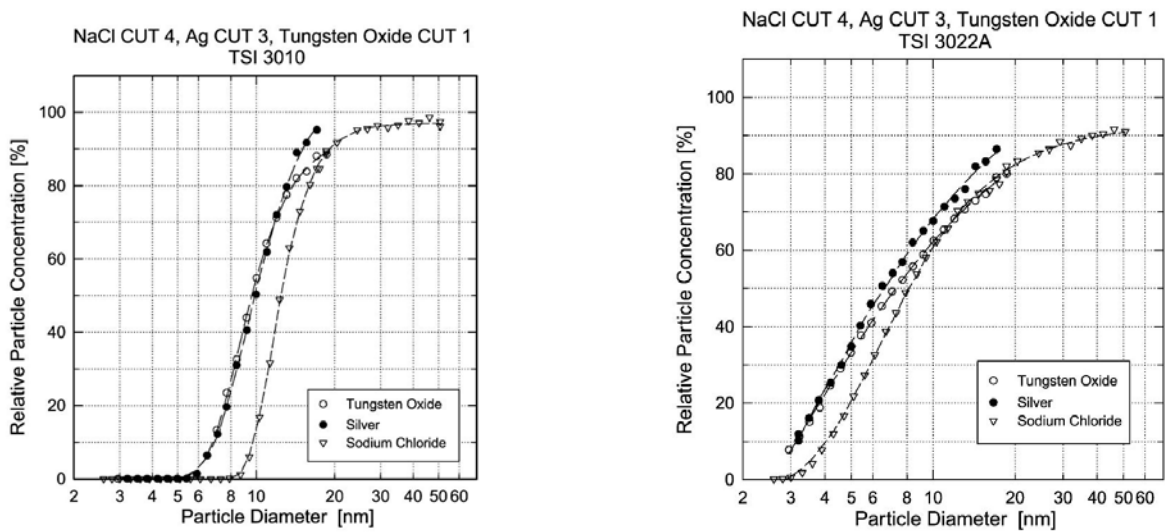


Figure 2.17: Effets de la composition de l'aérosol sur l'efficacité de détection des CNC 3010 et 3022 [Ankilov et al., 2002].

les CNC 3010 et 3022 sur des aérosols de chlorure de sodium, d'argent et d'oxyde tungstène. L'impact

de la nature de l'aérosol se traduit pour les 2 compteurs par une translation spatiale (sur l'espace des diamètres) de l'efficacité. Les particules d'argent sont plus facilement détectable que ne le sont les gouttelettes de chlorure de sodium. La même année, [Sem, 2002] propose une revue bibliographique des données publiées pour décrire les performances des CNC 3010, 3022 et 3025. il y décrit les effets de la température ambiante, de l'humidité relative et du système de génération de l'aérosol sur l'efficacité de détection de ces 3 compteurs.

Chapitre 3

L'inversion de données

Selon [Keller, 1976] repris par [Kern, 2003], deux problèmes sont dits inverses l'un de l'autre si la formulation de l'un met l'autre en cause, les deux problèmes jouent alors un rôle symétrique. Plus communément, le concept de problème inverse repose sur le fait de déterminer des causes connaissant des effets. Ainsi, par opposition, on parle de problème direct lorsque connaissant les causes, on déduit les effets. Dans le domaine des sciences expérimentales notamment pour lesquelles une mesure est réalisée, il est commun d'observer indirectement une quantité scalaire, vectorielle ou encore fonctionnelle. Les problèmes liés à l'inversion interviennent donc dans de nombreuses applications telles que l'imagerie médicale (échographie, scanners, ...), la chimie (estimation des constantes de réaction), le traitement d'image (reconstruire une image à partir d'une version floutée de celle-ci par exemple) et bien d'autres encore. Comme explicité par [Kern, 2003], ces problèmes se répartissent en deux grands groupes que sont :

- les problèmes linéaires (échographie, traitement d'image, . . .), qui se ramènent à la résolution d'une équation intégrale de première espèce,
- les problèmes non-linéaires, par exemple l'estimation des paramètres dans les EDP.

Cette dissertation se focalise sur les éléments du premier groupe. En effet, la détermination de la distribution granulométrique en nombre d'un aérosol réside dans la résolution d'une équation intégrale dite de *Fredholm*. La première partie de ce chapitre se concentre sur la notion de problème mathématiquement mal posé associé à ces équations intégrales de première espèce en considérant les opérateurs linéaires compacts dans les espaces de *Hilbert*. En deuxième partie de chapitre, l'attention se porte sur la procédure de régularisation classique décrite par [Tikhonov and Arsenin, 1977] ainsi que les limitations de ce type de méthode. La dernière partie est alors consacrée à la définition d'une nouvelle procédure d'inversion permettant d'estimer de façon plus fiable et plus robuste la granulométrie des aérosols lorsque celle-ci présente à la fois des profils à variations lentes (appelés des bosses) et à variations rapides (appelés des pics). En effet, la méthode proposée offrira un gain substantiel dans les conditions limites d'utilisation de la régularisation classique. Une comparaison numérique sur des distributions simulées fournira une première justification de cet apport.

3.1 Introduction au problème mal posé

Soit $x \mapsto f(x)$ une fonction inconnue telle que :

$$f(x) - \zeta \int_a^b \mathcal{K}(x, y) f(y) dy = h(x), \quad (3.1)$$

l'inversion est le problème qui, connaissant les fonctions \mathcal{K} , h et la constante ζ , consiste à trouver f . L'équation intégrale d'inconnue f décrite en (3.1) se réécrit $\mathcal{A}f = h$, on parle alors d'équation intégrale de Fredholm de première espèce, ou encore $\mathcal{A}f - f = h$, l'appellation deuxième espèce est cette fois

employée. \mathcal{A} est nommé l'opérateur intégral linéaire de noyau K et h est le terme source. Dans un premier temps, nous considérons l'étude des problèmes inverses linéaires dans les espaces de *Hilbert*. Ainsi, soient \mathcal{F} et \mathcal{H} deux espaces de *Hilbert*, on a $\mathcal{A} : \mathcal{F} \mapsto \mathcal{H}$ ou encore noté $\mathcal{A} \in \mathcal{L}(\mathcal{F}, \mathcal{H})$, $f \in \mathcal{F}$ et $h \in \mathcal{H}$. Les propriétés algébriques des espaces vectoriels de dimension finie s'étendent aux espaces de *Hilbert* pourvu de se limiter aux applications linéaires continues et aux sous-espaces vectoriels fermés. Se placer dans ces espaces vectoriels topologiques particuliers va permettre de définir si un problème mathématique est bien ou mal posé dans le cadre des opérateurs linéaires. Voici un rappel de quelques définitions d'analyse fonctionnelle qui seront utiles pour la suite.

Définition 1 (Espace préhilbertien)

Un espace préhilbertien est un espace vectoriel muni d'un produit scalaire réel ou produit scalaire hermitien selon si l'on considère l'espace des réels ou des complexes.

Définition 2 (Espace de *Hilbert*)

Un espace de *Hilbert* est un espace préhilbertien dont la norme associée le rend complet. Soit $(\mathcal{H}, \langle \cdot, \cdot \rangle)$ un espace préhilbertien, il est dit Espace de *Hilbert* si sa norme associée en fait un espace complet et donc si toute suite de Cauchy dans \mathcal{H} converge au sens de la norme $\langle \cdot, \cdot \rangle$.

Définition 3 (Opérateur adjoint)

Soit $\mathcal{A} \in \mathcal{L}(\mathcal{F}, \mathcal{H})$ un opérateur intégrable linéaire, l'opérateur intégral $\mathcal{A}^* \in \mathcal{L}(\mathcal{H}, \mathcal{F})$ est nommé opérateur adjoint de \mathcal{A} si $\forall f \in \mathcal{F}, \forall h \in \mathcal{H}$:

$$\langle h, \mathcal{A}f \rangle = \langle \mathcal{A}^*h, f \rangle. \quad (3.2)$$

Définition 4 (Adhérence ou Fermeture d'un sous-espace)

Un sous-espace \mathcal{G} d'un espace de *Hilbert* \mathcal{F} est fermé si toute suite de vecteurs de \mathcal{G} convergente dans \mathcal{F} , converge vers un vecteur de ce sous-espace \mathcal{G} :

$$\forall (x_n)_{n \in \mathbb{N}} \in \mathcal{G}, y = \lim_{n \rightarrow \infty} x_n \Rightarrow y \in \mathcal{G} \quad (3.3)$$

Soit \mathcal{F} un espace de *Hilbert*, la fermeture du sous-espace \mathcal{G} , notée $\overline{\mathcal{G}}$, est le plus petit sous-espace fermé de \mathcal{F} contenant \mathcal{G} .

Définition 5 (Norme d'un opérateur)

La norme d'un opérateur $\mathcal{A} \in \mathcal{L}(\mathcal{F}, \mathcal{H})$ est donnée par la formule suivante :

$$\|\mathcal{A}\| = \sup_{f \in \mathcal{F}} \frac{\|\mathcal{A}f\|_{\mathcal{H}}}{\|f\|_{\mathcal{F}}}. \quad (3.4)$$

Définition 6 (Fermeture d'un opérateur)

Un opérateur $\mathcal{A} \in \mathcal{L}(\mathcal{F}, \mathcal{H})$ est dit fermé si et seulement si pour toute suite $(x_n)_n \in \mathcal{F}$ telle que $\lim_{n \rightarrow \infty} x_n = x$ et $\lim_{n \rightarrow \infty} \mathcal{A}x_n = y$, on a alors $x \in \mathcal{F}$ et $y = \mathcal{A}x$.

Définition 7 (Compacité d'un opérateur)

Un opérateur est dit compact s'il est fermé et borné. Soit $\mathcal{A} \in \mathcal{L}(\mathcal{F}, \mathcal{H})$, \mathcal{A} est borné s'il existe α tel que $\|\mathcal{A}f\| \leq \alpha\|f\|, \forall f \in \mathcal{F}$. On dit que \mathcal{A} est un opérateur compact si et seulement si l'image de toute partie bornée de \mathcal{F} est relativement compacte dans \mathcal{H} . Cela équivaut à dire que si $\mathcal{G} \subset \mathcal{F}$ est bornée et l'adhérence de l'image de \mathcal{G} par l'opérateur \mathcal{A} notée $\overline{\mathcal{A}(\mathcal{G})}$ est compacte dans \mathcal{H} , alors \mathcal{A} est un opérateur compact (ce qui est la définition de la relative compacité).

Partant des définitions données ci-dessus, selon [Hadamard, 1902], le problème de l'estimation de f

3.1 Introduction au problème mal posé

sachant que $\mathcal{A}f = h$ est dit bien posé s'il admet une solution, si celle-ci est unique et si enfin elle est stable. Mathématiquement, cela se traduit par 3 conditions sur le problème $\mathcal{A}f = h$:

1. **Existence** : $\forall h \in \mathcal{H} = \mathcal{I}m(\mathcal{A}), \exists f \in \mathcal{F}$ tel que $\mathcal{A}f = h$,
2. **Unicité** : $\mathcal{A}f = 0 \mapsto f = 0 \Leftrightarrow \mathcal{K}er(\mathcal{A}) = \{0\}$,
3. **Stabilité** : $\mathcal{I}m(\mathcal{A}) = \overline{\mathcal{I}m(\mathcal{A})} = \mathcal{K}er(\mathcal{A}^*)$ ou encore soient \hat{f} et \hat{f}' solutions respectives de $\mathcal{A}f = h$ et $\mathcal{A}f = h'$, alors $\|h - h'\| \mapsto 0 \Rightarrow \|\hat{f} - \hat{f}'\| \mapsto 0$

La question qui se pose est alors de comprendre pour quelles raisons les opérateurs intégraux de première espèce conduisent à des problèmes mal posés, ou autrement dit, pourquoi ces opérateurs ne sont pas inversibles. L'explication provient des propriétés spectrales des opérateurs compacts dans les espaces de *Hilbert*. La décomposition spectrale des opérateurs intégraux s'apparente à la décomposition en valeurs singulières dans le cas de la dimension finie fournit les explications nécessaires comme nous allons le voir.

Soit $\mathcal{A} \in \mathcal{L}(\mathcal{F}, \mathcal{H})$ un opérateur intégral linéaire, compact dans \mathcal{H} , alors, d'après [Brézis, 1983], il existe $\{\sigma_n^2, \phi_n, \psi_n\}_{n \in N^*}$ le système singulier de l'opérateur \mathcal{A} tel que chaque élément de $\mathcal{I}m(\mathcal{A})$ et $\mathcal{I}m(\mathcal{A}^*)$ dans ce système soit donné comme suit : $\forall f \in \mathcal{F}, \forall h \in \mathcal{H}$,

$$\mathcal{A}f = \sum_{n=1}^{\infty} \sigma_n \langle f, \phi_n \rangle_{\mathcal{F}} \psi_n, \quad (3.5)$$

$$\mathcal{A}^*h = \sum_{n=1}^{\infty} \sigma_n \langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}} \phi_n, \quad (3.6)$$

où $(\sigma_n)_{n \in N^*} \in R^*$ est la suite décroissante de valeurs singulières qui selon le théorème d'*Hilbert-Schmidt* a la propriété d'une part de positivité et de plus, $\lim_{n \rightarrow \infty} \sigma_n^2 = 0$. Les fonctions orthonormales singulières $\{\phi_n\}_{n \in N^*}$ et $\{\psi_n\}_{n \in N^*}$ forment des bases respectivement de $\mathcal{K}er(\mathcal{A})^\perp$, $\mathcal{K}er(\mathcal{A}^*)^\perp$. Le problème $\mathcal{A}f = h$ se réécrit souvent sous la forme d'un problème des moindres carrés pour lequel une solution s'écrit comme le minimum de l'écart aux données :

trouver $f \in \mathcal{F}$ tel que

$$\hat{f} = \min_{f \in \mathcal{F}} \|\mathcal{A}f - h\|_{\mathcal{H}}^2. \quad (3.7)$$

L'idée est alors de remplacer le problème initial $\mathcal{A}f = h$ par le problème aux équations dites normales $\mathcal{A}^*\mathcal{A}f = \mathcal{A}^*h$. Partant des équations (3.5) et (3.6) issues de la décomposition spectrale de \mathcal{A} , si $h \in \overline{\mathcal{I}m(\mathcal{A})}$ et $\sum_{n=1}^{\infty} \frac{|\langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}|^2}{\sigma_n^2} < \infty$ (condition de *Picard*), alors l'ensemble des solutions du problème au sens des moindres carrés s'écrit :

$$\hat{f} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}}{\sigma_n} \phi_n + \mathcal{K}er(\mathcal{A}). \quad (3.8)$$

Ce que l'on met en évidence ici, c'est la présence de multiples solutions pour une observation donnée, ce qui implique un choix, et donc un critère pour la sélection d'une unique solution.

Parmi cet ensemble, un choix courant est de considérer la solution de norme minimale. L'opérateur linéaire $\mathcal{A}^\dagger : \mathcal{I}m(\mathcal{A}) \oplus \mathcal{I}m(\mathcal{A})^\perp \mapsto \mathcal{F}$, appelé l'inverse généralisé de \mathcal{A} (ou pseudo-inverse de \mathcal{A}) fournit l'unique élément de norme minimale, proposant ainsi une solution \hat{f} qui n'est autre que $\hat{f} = \mathcal{A}^\dagger h$, où

$$\hat{f} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}}{\sigma_n} \phi_n. \quad (3.9)$$

Outre la non unicité de la solution, un autre aspect relatif à la définition du problème bien posé est la stabilité. En considérant une perturbation δh sur les données, en considérant la solution \hat{f} de norme

minimale donnée par l'équation (3.9), on peut expliciter la solution perturbée $f + \delta f$ et ainsi traduire la sensibilité de la solution à cette perturbation des données :

$$f + \delta f = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}}{\sigma_n} \left[1 + \frac{\langle \delta h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}}{\langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}} \right] \phi_n. \quad (3.10)$$

Le terme bruit sur signal modélisé par le terme $\frac{\langle \delta h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}}{\langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}}$ engendre les problèmes de stabilité. En effet, même lorsque le bruit est faible par rapport au signal, les composantes du bruit sont divisées par les valeurs singulières de l'opérateur qui tendent vers 0 en l'infini. La compacité des opérateurs intégraux dans les espaces de *Hilbert* induit donc un problème mathématiquement mal posé en ce sens de non unicité de la solution mais aussi de non stabilité. Pour répondre à ce problème, des techniques dites de régularisation permettent d'outrepasser ce problème comme nous le verrons dans la prochaine section.

3.2 La régularisation

L'unicité et la stabilité des solutions pour les équations intégrales de première espèce ne sont pas garanties respectivement en raison de la compacité de l'opérateur entraînant la non continuité de l'opérateur inverse et du niveau de bruit sur les observations qui entraîne de fortes oscillations sur la solution reconstruite. Les méthodes dites de régularisation sont utilisées pour stabiliser le problème au sens des moindres carrés afin de le rendre moins sensible aux perturbations sur les mesures réelles effectuées mais aussi pour garantir l'unicité de la solution. Partant des équations normales $\mathcal{A}^* \mathcal{A} f = \mathcal{A}^* h$, l'idée est d'approcher l'opérateur linéaire compact autoadjoint $\mathcal{A}^* \mathcal{A}$ par un opérateur dit de régularisation continu et qui converge vers $(\mathcal{A}^* \mathcal{A})^{-1}$. Un régulariseur du problème $\mathcal{A}^* \mathcal{A} f = \mathcal{A}^* h$ est défini comme une famille d'opérateurs $\{\mathcal{T}_{\lambda}, \lambda \in \Lambda \subset \mathbb{R}^+\}$ tels que : $\forall f \in \mathcal{F}, \lim_{\lambda \rightarrow 0} \|\mathcal{T}_{\lambda} \mathcal{A}^* \mathcal{A} f - f\|^2 = 0$, avec \mathcal{T}_{λ} continu de \mathcal{H} dans \mathcal{F} , $\forall \lambda \in \Lambda$.

La stabilisation est obtenue généralement en définissant une fonctionnelle à minimiser, fonctionnelle qui est communément choisie comme la somme d'un critère d'adéquation aux données et d'un critère informatif sur la solution à reconstruire, on parle alors d'*a priori* sur la solution à estimer.

3.2.1 La méthode TSVD

Une méthode courante de régularisation qui n'est autre qu'une variante de la décomposition en valeurs singulières des opérateurs se nomme le spectral cut-off ou TSVD (pour Truncated Singular Value Decomposition). La méthode consiste à réduire la dimension de l'espace des solutions en tronquant la somme dans l'équation (3.9) à un niveau dit de troncature l [Vogel, 1986] défini de sorte que l'estimation \hat{f} se récrive :

$$\hat{f} = \sum_{n=1}^l \frac{\langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}}}{\sigma_n} \phi_n. \quad (3.11)$$

Cela revient à projeter la solution sur un sous-espace engendré par un nombre réduit de vecteurs singuliers. On élimine ainsi les coefficients associés aux valeurs singulières les plus petites (coefficients qui sont souvent élevés) afin de réduire les oscillations parasites dans l'estimation finale. L'*a priori* pour cette méthode dépend uniquement du système et non de la solution à estimer ce qui la différencie des techniques de régularisation classique comme la régularisation de Tikhonov.

3.2.2 La régularisation classique de *Tikhonov* [Tikhonov and Arsenin, 1977]

La régularisation de *Tikhonov* repose sur l'idée que l'on ne peut guère se fier uniquement aux données comme c'est le cas pour la méthode des moindres carrés lorsque le bruit de mesure est trop élevé. En

3.2 La régularisation

effet, l'instabilité induite par le bruit dégrade la solution qui devient inacceptable. Il suggère donc d'ajouter un critère que l'on peut caractériser comme un niveau d'infidélité acceptable aux données au profit d'une fidélité accordée à un *a priori* sur la solution à estimer. Le critère est alors défini comme une minimisation de la somme d'une distance aux données et d'une distance à l'*a priori*. Soient respectivement J_a et J_p ces deux mesures de distances, alors une solution régularisée du problème s'exprime par la formulation variationnelle suivante :

$$\hat{f}_\lambda = \min\{J_a(\mathcal{A}f, h) + \lambda J_p(f)\}. \quad (3.12)$$

Le calcul de la solution étant facilité pour des mesures J_a et J_p quadratiques, Tikhonov les choisit comme suit :

$$J_a(\mathcal{A}f, h) = \|\mathcal{A}f - h\|_{\mathcal{H}}^2, \quad (3.13)$$

$$J_p(f) = \|f\|_{\mathcal{F}}^2. \quad (3.14)$$

Le problème se réécrit comme un problème des moindres carrés augmenté. Soit $\tilde{\mathcal{A}} \in \mathcal{L}(\mathcal{F}, \mathcal{F} \times \mathcal{H})$ avec $\tilde{\mathcal{A}} = \begin{pmatrix} \mathcal{A} \\ \sqrt{\lambda}I \end{pmatrix}$ et $\tilde{h} = \begin{pmatrix} h \\ 0 \end{pmatrix}$, alors l'équation (3.12) devient :

$$\hat{f}_\lambda = \min \|\tilde{\mathcal{A}}f - \tilde{h}\|_{\mathcal{F} \times \mathcal{H}}^2. \quad (3.15)$$

La solution du problème (3.12) s'écrit alors comme suit :

$$\hat{f}_\lambda = (\mathcal{A}^* \mathcal{A} + \lambda I)^{-1} \mathcal{A}^* h. \quad (3.16)$$

Comme pour le problème des moindres carrés classique, la décomposition en valeurs singulières de l'opérateur offre une solution régularisée \hat{f}_λ qui satisfait l'équation normale $\mathcal{A}^* \mathcal{A}f + \lambda f = \mathcal{A}^* h$ et s'exprime comme :

$$\hat{f}_\lambda = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sigma_n}{(\sigma_n^2 + \lambda)} \langle h, \psi_n \rangle_{\mathcal{H}} \phi_n. \quad (3.17)$$

De nombreuses approches régularisantes qui utilisent le schéma initialement introduit par *Tikhonov* ont été proposées, en effet, à chaque application, la question est alors de statuer sur la mesure d'adéquation aux données et la mesure associée à l'*a priori* sur la solution. Le dernier point très important est la sélection du paramètre de régularisation λ qui confère un poids plus ou moins conséquent à la fidélité aux données ou à l'*a priori*. La mesure d'adéquation aux données étant choisie comme une distance \mathcal{L}^2 , les sections 3.2.3 et 3.2.4 traitent respectivement des choix d'*a priori* ainsi que des méthodes existantes pour l'estimation du paramètre de régularisation λ .

3.2.3 Le choix de l'*a priori*

Le choix de l'*a priori* sur la solution est bien évidemment dépendant du problème traité, il s'agit toutefois de définir les propriétés des fonctionnelles régularisantes pour s'assurer d'un choix adapté au problème en question. Voici quelques exemples d'*a priori* communément rencontrés en inversion de données.

Régularisation quadratique avec *a priori* de douceur

Parmi les fonctionnelles régularisantes utilisées pour les problèmes d'inversion, la plus courante est celle qui, selon un critère dit énergétique, va pénaliser l'énergie de la dérivée seconde. Cela se traduit par la fonction J_p donnée par :

$$J_p(f) = \int \left| \frac{\partial^2 f(x)}{\partial^2 x} \right|^2 dx. \quad (3.18)$$

L'*a priori* consiste ici à pénaliser dans la multitude de solutions celles qui sont à variations rapides. De cette manière, l'estimation finale présentera des variations adoucies par rapport à la solution obtenue par moindres carrés. Ce critère, comme la mesure J_a , est quadratique et s'avère facile à mettre en œuvre ce qui explique son succès.

Régularisation \mathcal{L}_p

Lorsque le signal à reconstruire est supposé parcimonieux ce qui signifie que la représentation faite de ce signal dans une base présente des coefficients majoritairement nuls, une fonctionnelle régularisante appropriée est la régularisation sur les espaces \mathcal{L}_p définie par l'intégrale suivante :

$$J_p(f) = \int \|f(x)\|_p^p dx, \quad (3.19)$$

où $\|\cdot\|_p$ représente la norme sur l'espace \mathcal{L}_p telle que : $\|f\|_p = (\int |f(x)|^p dx)^{\frac{1}{p}}$. Ce type de régularisation est utilisée en traitement d'images (compression par exemple) avec $p = 1$ notamment [Candes et al., 2008]. L'objectif est alors dans ce cadre d'application de pouvoir estimer un signal à partir d'une information limitée sur celui-ci ou encore de sélectionner l'information utile et ainsi laisser de côté l'information redondante. Ce critère n'étant plus quadratique, hormis pour $p = 2$, la complexité pour l'estimation de f est accrue.

Régularisation au sens du maximum d'entropie

Sous l'hypothèse d'une solution telle que $f(x) \geq 0 \forall x$, la solution est choisie comme celle qui maximise l'entropie donnée par Shannon en théorie de l'information comme l'intégrale $-\int f(x) \log f(x) dx$, ou par équivalence qui minimise l'opposé de l'entropie et offre la fonctionnelle régularisante J_p suivante :

$$J_p(f) = \int f(x) \log f(x) dx. \quad (3.20)$$

L'utilisation de ce type de fonctionnelle permet, parmi un nombre de solutions possibles, de choisir celle qui va satisfaire toutes les contraintes sur la solution et qui sera la moins sujette à l'information inconnue (ce qui se traduit mathématiquement comme la fonction qui maximise l'entropie). Toutefois, cette mesure n'étant plus quadratique et la fonctionnelle régularisante étant non linéaire, le temps de calcul nécessaire à l'établissement de la solution s'en trouve rallongé en comparaison avec les critères construits à partir d'une norme \mathcal{L}_2 .

3.2.4 Estimation du paramètre de régularisation

Une fois les fonctionnelles J_a et J_p choisies, un des points clés de la régularisation est la détermination de λ dans l'équation (3.12). Ce paramètre traduit le compromis entre le biais et la variance sur l'estimation de f . Lorsque $\lambda = 0$, le biais est nul et on retrouve la solution au sens des moindres carrés si la mesure d'adéquation est choisie comme une distance \mathcal{L}^2 . La variance est alors élevée. Lorsqu'au contraire $\lambda \mapsto \infty$, la variance est nulle et le biais devient important, en effet, on ne se fie plus aux données pour l'estimation mais complètement à l'*a priori* dans ce cas. On comprend alors que le choix du λ est crucial dans cette démarche régularisante. Nous proposons de nous intéresser à plusieurs critères couramment utilisés pour la détermination du λ . Successivement, nous considérons les méthodes pour lesquelles une connaissance sur la variabilité des observations doit être apportée et celles qui ne nécessitent aucune information. Les sections 3.2.4 et 3.2.4 présentent les méthodes courantes pour déterminer le paramètre de régularisation associé au problème régularisé décrit en (3.12).

Méthodes nécessitant une connaissance sur la variabilité sur les observations

Le principe de discrédance : Introduit par [Phillips, 1962], le principe de discrédance est utilisé pour le choix du paramètre de régularisation λ en considérant qu'une solution régularisée doit être telle que la norme du résidu obtenu pour une valeur « correcte » de λ doit être équivalente au niveau de bruit sur les observations. Autrement dit, soit ϵ_h le niveau de bruit sur les observations, si on considère

3.2 La régularisation

$(\lambda_n)_{n=1}^N$ une suite de valeurs décroissantes pour le paramètre de régularisation pour lesquelles on obtient la suite d'estimations $(\hat{f}_\lambda^{[n]})_{n=1,\dots,N}$ (solutions de moins en moins régularisées), parmi les éléments de la suite, le paramètre de régularisation calculé, noté $\hat{\lambda}$ est le premier élément qui satisfait :

$$\|\mathcal{A}\hat{f}_\lambda^{[n]} - h\|_{\mathcal{H}} \leq \epsilon_h \varrho \quad , \varrho \geq 1, \quad (3.21)$$

où ϱ est un paramètre d'ajustement. Cette méthode de sélection a l'inconvénient d'être dépendante du bruit sur les observations et donc instable pour des niveaux de bruit extrêmes. Des dérivés de ce principe ont donc vu le jour, notamment le principe de discrédance modifié développé par [Raus, 1984]. La méthode repose sur la minimisation d'une borne sur l'erreur quadratique de la solution régularisée. $\hat{\lambda}$ est alors défini comme vérifiant l'équation suivante pour la régularisation classique de Tikhonov :

$$\lambda^{\frac{3}{2}} \|(\mathcal{A}^* \mathcal{A} + \lambda I)^{-\frac{3}{2}} h\| = \epsilon_h \varrho \quad , \varrho \geq 1. \quad (3.22)$$

Le critère de l'erreur monotone [Tautenhahn and Hämarik, 1999] : Lorsque la régularisation est trop forte et donc que l'on considère les fortes valeurs de λ (correspondant à un indice n faible pour la suite $(\lambda_n)_{n=1}^N$), l'erreur de régularisation $\|f - \hat{f}_\lambda^{[n]}\|_{\mathcal{F}}$ décroît de façon monotone à mesure que n augmente. Cette observation ouvre la voie pour un critère sur la monotonie. $\hat{\lambda}$ est alors calculé comme la valeur maximale prise par λ dans l'inégalité :

$$\frac{|\langle \mathcal{A}\hat{f}_\lambda^{[n]} - h, \frac{d}{d\lambda} \mathcal{A}^{*-1} \mathcal{A}^{-1} h \rangle|}{\|\frac{d}{d\lambda} \mathcal{A}^{*-1} \mathcal{A}^{-1} h\|} \leq \epsilon_h \varrho \quad , \varrho \geq 1. \quad (3.23)$$

Méthodes ne nécessitant aucune connaissance sur la variabilité sur les observations

Le critère de quasi-optimalité : Décrit par [Tikhonov and Glasko, 1965], c'est l'un des critères les plus simples pour la détermination du paramètre de régularisation, son expression dans sa version continue est donnée par [Tikhonov and Arsenin, 1977]. $\hat{\lambda}$ est calculé comme le minimum de la fonction suivante :

$$\hat{\lambda} = \arg \min Q(\lambda) = \arg \min \left\| \lambda \frac{d\hat{f}_\lambda^{[n]}}{d\lambda} \right\|. \quad (3.24)$$

La méthode de la courbe en L : La méthode repose sur la représentation graphique en échelle logarithmique du résidu de la régularisation $\|\mathcal{A}\hat{f}_\lambda^{[n]} - h\|$ en fonction de l'*a priori* sur la solution à reconstruire qui n'est autre que $\|\hat{f}_\lambda^{[n]}\|$ pour la régularisation classique de Tikhonov. En effet, cette technique proposée à l'origine par [Hansen, 1992] [Hansen and O'Leary, 1993], comme son nom l'indique, utilise le fait que le passage entre sous-régularisation et sur-régularisation pour la suite $(\lambda_n)_{n=1}^N$ donnée produit un coin sur la représentation bidimensionnelle $(\|\mathcal{A}\hat{f}_\lambda^{[n]} - h\|, \|\hat{f}_\lambda^{[n]}\|)$ comme illustré sur la figure 3.1 sur le cas test de *Shaw*. La partie verticale de la courbe correspond aux faibles valeurs de λ alors que la partie horizontale représente les fortes valeurs. Le critère de sélection du λ repose sur la recherche de la valeur du λ associée au coin de cette courbe. L'utilisation accrue de cette technique de discrimination du meilleur compromis biais/variance a donné naissance à plusieurs algorithmes. Parmi eux, on peut donner 3 techniques basées sur :

1. le calcul du point de courbure maximale
2. le calcul du point le plus proche d'un point référent comme l'origine
3. le calcul du point tangent avec une droite de pente négative

[Belge et al., 2002] ont prouvé en tentant de généraliser la technique de la courbe en L pour le calcul de multiples paramètres de régularisation que les deux premières approches sont telles que le point qui se rapproche le plus de l'origine est en réalité proche du point de courbure maximale. Certains algorithmes plus récents comme celui développé par [Hansen et al., 2007], s'intéresse à la fois au comportement local (étude de l'angle qui se rapproche le plus de la valeur $-\frac{\pi}{2}$ pour 3 points consécutifs de la courbe) et global (calcul du point le plus proche de l'origine) de la courbe afin de définir le coin correspondant au meilleur λ . Toutefois, l'inconvénient majeur de cette méthode est qu'elle suppose l'existence de ce coin et ce n'est pas toujours le cas en pratique. Une variante qui porte le nom de courbe en U est décrite par [Krawczyk-Stando and Rudnicki, 2007], il utilise cette fois une représentation de la somme de l'inverse de la norme du résidu et de la norme de la solution régularisée décrite par la fonction $g(\lambda)$ telle que : $g(\lambda) = \frac{1}{\|Af_\lambda^{[n]} - h\|} + \frac{1}{\|\hat{f}_\lambda^{[n]}\|}$. La recherche du minimum de g conduit ensuite au choix de λ . Cette nouvelle approche offre des performances comparables à celles obtenues par la méthode de la courbe en L même si la méthode doit encore être éprouvée sur de nombreux jeux de données comme concédé par l'auteur.

La validation croisée généralisée : Appliquée à des jeux de données discrètes, la validation croisée généralisée (ou GCV) est décrite par [Wahba, 1977]. La méthode est un cas particulier du principe de validation croisée pour des opérateurs linéaires qui revient à omettre volontairement un point dans les observations (Leave-one-out en anglais) et calculer la solution associée au problème réduit. $\hat{\lambda}$ est alors choisi comme le paramètre qui permet d'estimer au plus près la donnée omise. En considérant le système linéaire $Af = h$, avec $A \in \mathcal{M}_{m,q}(R)$, $f \in R^q$, $h \in R^m$, cela se traduit numériquement par la détermination du minimum de la fonction $V(\lambda)$ suivante :

$$V(\lambda) = \sum_{i=1}^m (h_i - \hat{h}_i)^2 = \frac{\frac{1}{m} \|(I - A(A^t A + m\lambda I)^{-1} A^t)h\|^2}{\left(\frac{1}{m} \text{Trace}(I - A(A^t A + m\lambda I)^{-1} A^t)\right)^2}, \quad (3.25)$$

où \hat{h}_i est l'observation estimée avec le point omis, Trace est défini comme la trace de la matrice (la somme de ses éléments diagonaux). Grandement utilisée, cette méthode présente néanmoins des instabilités liées au bruit sur les observations, notamment en présence de bruit coloré. D'autres techniques voient alors le jour comme la version dite robuste de la validation croisée généralisée (ou RGCV). Soit $B_1(\lambda) = A(A^t A + m\lambda I)^{-1} A^t$, en posant $B_2(\lambda) = \frac{1}{m} \text{Trace}(B_1^2(\lambda))$, $\hat{\lambda}$ est défini en tant que minimum de la somme pondérée suivante :

$$V(\bar{\lambda}) = [\gamma_r + (1 - \gamma_r)B_2(\lambda)] V(\lambda), \quad (3.26)$$

où $\gamma_r \in [0, 1]$ est un paramètre de robustesse. Quand $\gamma_r = 1$, on retrouve la méthode GCV et lorsque γ_r décroît progressivement vers 0, le critère assure une meilleure stabilité [Lukas et al., 2010] que celui défini par l'équation (3.25).

Certains de ces critères sont présentés sur un cas test de reconstruction d'image en dimension 1 (le problème dit de *Shaw*). Les résultats sont extraits du package *regtools* développé par *Christian Hansen* sous MATLAB et disponible en ligne [Hansen, 2008]. Le problème est une équation intégrale de *Fredholm* de 1^{ère} espèce dont le noyau \mathcal{K} et la solution f sont donnés par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} \mathcal{K}(s, t) &= (\cos(s) + \cos(t)) \left(\frac{\sin(u)}{u} \right)^2, \\ u &= \pi(\sin(s) + \sin(t)), \\ f(t) &= a_1 \exp(-c_1(t - t_1)^2) + a_2 \exp(-c_2(t - t_2)^2). \end{aligned}$$

Les critères que nous illustrons pour l'estimation du paramètre de régularisation λ , noté $\hat{\lambda}$ pour ce problème donné sont : le critère de la courbe en L, le critère GCV et le critère de quasi-optimalité. Ce sont les critères les plus couramment utilisés en pratique. Le bruit sur les observations ϵ est ici choisi

3.2 La régularisation

comme un bruit blanc gaussien.

Les figures 3.1, 3.2 et 3.3 montrent respectivement la détermination du coin pour le critère de la courbe en L et les fonctions $Q(\lambda)$ et $V(\lambda)$ et leurs minimums respectifs pour les critères de quasi-optimalité et GCV.

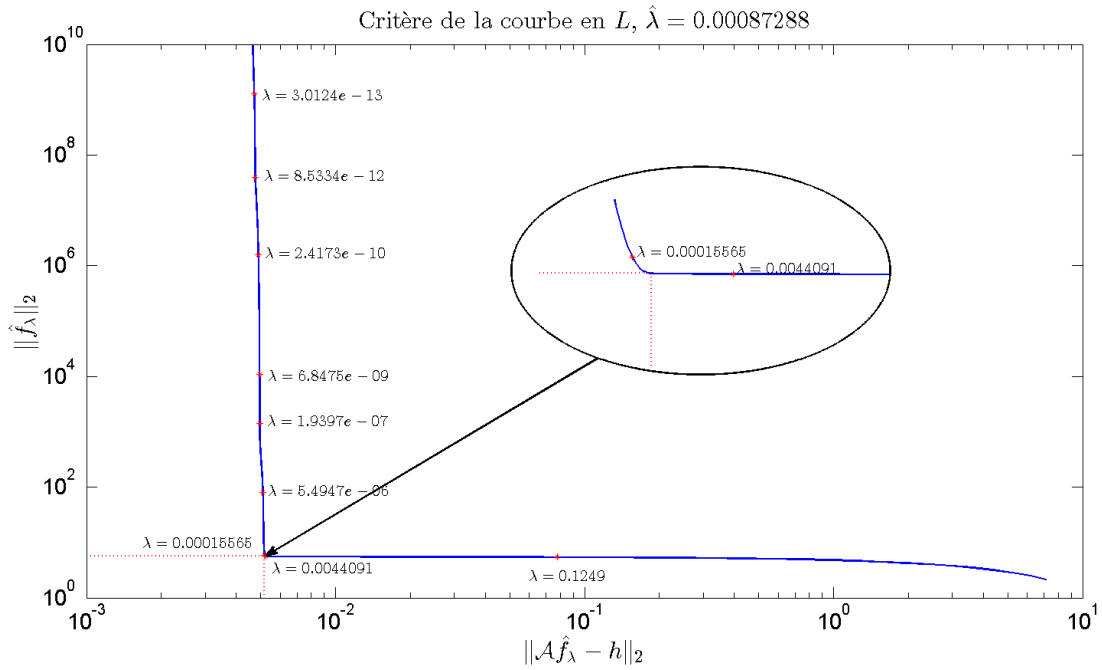


Figure 3.1: Critère de la courbe en L pour le problème de *Shaw*.

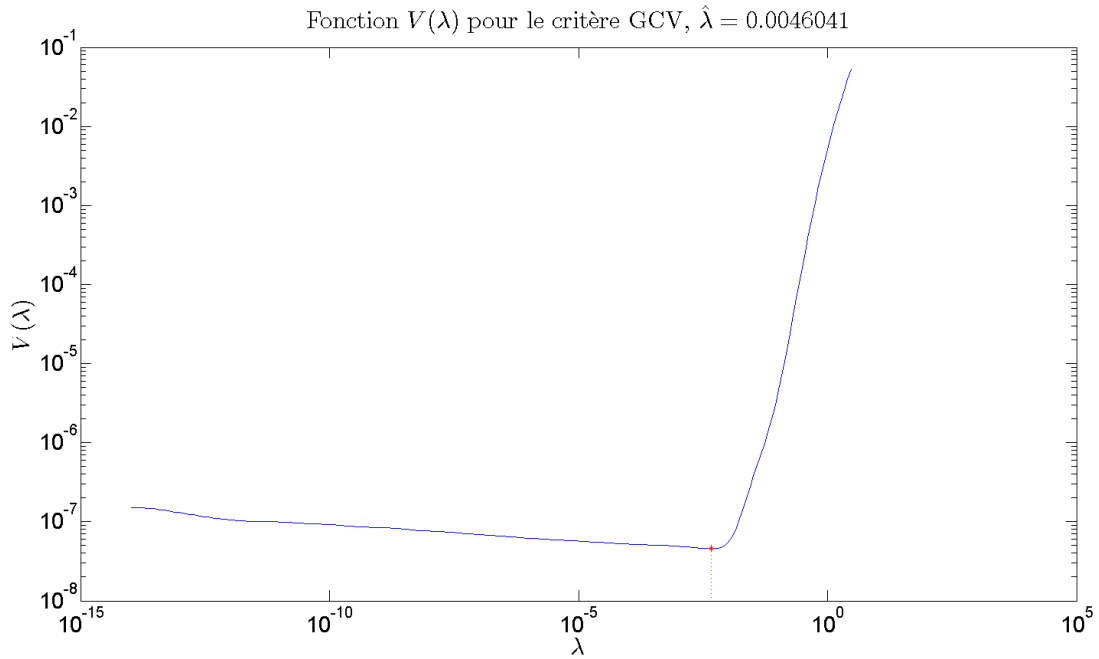
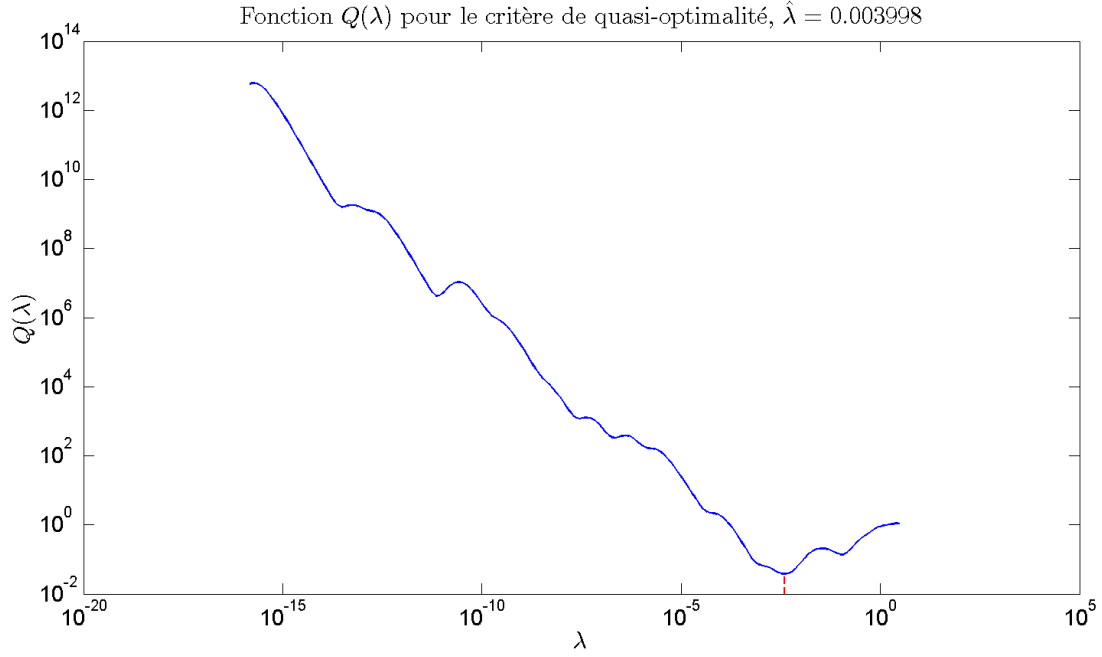


Figure 3.2: Critère GCV pour le problème de *Shaw*.

Figure 3.3: Critère de quasi-optimalité pour le problème de *Shaw*.

RESUME

La régularisation nécessite de réaliser un certain nombre de choix afin d'estimer la fonction inconnue f . Il faut définir les mesures associées respectivement à la fidélité aux données et à l'*a priori*. Le choix de l'*a priori* étant spécifique aux signaux à estimer, il n'existe pas d'autres issues que celles d'acquérir une certaine expertise au niveau de l'application afin de justifier du choix de la fonctionnelle régularisante. A la suite de cette étape, il reste encore à définir une méthode pour le calcul du paramètre de régularisation qui traduit le compromis entre biais et variance pour reconstruire f . Le choix de la méthode de sélection du λ va dépendre de l'information disponible. Par information, on entend la connaissance sur la variabilité de la mesure (dispersion des signaux mesurés ou comptages pour l'application qui nous intéresse) et sa quantification (exprimée en terme de loi statistique ou simplement par une borne majorante). Pour un complément d'information sur le problème associé au choix du paramètre de régularisation, une étude comparative des méthodes les plus employées pour un problème régularisé par la méthode TSVD et la méthode de *Tikhonov* a été réalisée en 2011 par [Bauer and Lukas, 2011]. Pour cette étude, 3 cas sont étudiés : un problème en dimension infinie où \mathcal{A} est un opérateur linéaire compact entre 2 espaces de *Hilbert* séparables, un problème en dimension finie où \mathcal{A} est une matrice de rang finie présentant un conditionnement élevé et enfin un problème en dimension infinie pour lequel on dispose uniquement de quelques valeurs discrètes des observations. Pour chaque cas, deux modèles de bruit additifs sont choisis (bruit blanc et bruit coloré). Les avantages et inconvénients de chacune des méthodes ainsi que leurs cadres d'application respectifs y sont détaillés. Toutefois, bien que la régularisation soit très utilisée en pratique, elle n'est toutefois pas sans limite comme nous le verrons dans le paragraphe suivant.

3.2.5 Cas du SMPS : limitations de la régularisation avec *a priori* homogène

La régularisation classique considère un *a priori* dit homogène sur toute la gamme de mesure. En effet, la pénalisation induite par le choix du paramètre de régularisation s'opère uniformément sur toute la plage dédiée à la reconstruction de f . Pour certains signaux d'entrée, cette pénalisation doit s'adapter, opérant une régularisation plus ou moins forte en fonction de la forme du signal en présence (pénalisation faible au niveau des pics du signal correspondant aux fortes concentrations et forte au niveau des bosses). C'est le cas pour l'inversion des données mesurées par technique SMPS. En effet,

deux éléments prépondérants entraînent la nécessité d'une pénalisation ajustable :

- les distributions granulométriques peuvent présenter une association de profils à variations rapides et lentes (pics et bosses)
- la dispersion expérimentale est fonction de l'amplitude du signal (plus il y a de particules à compter, plus la dispersion des comptages est élevée)

Une pénalisation forte des distributions à variations lentes (profils typique des aérosols atmosphériques ou des huiles) assure une bonne reconstruction de f alors qu'*a contrario* une faible pénalisation des distributions à variations rapides garantit la conservation de la structure de f . Dans le cas où les deux types de distributions sont associées, les limitations d'une régularisation homogène apparaissent : dégradation de la structure des pics pour une pénalisation trop importante ou solutions sous-régularisées avec oscillations caractéristiques si la pénalisation est trop faible. A ces considérations relatives au mesurande viennent s'ajouter les effets de la dispersion des signaux mesurés par le compteur à noyau de condensation. La variabilité observée sur les comptages de particules dépend dans le cas considéré du nombre de particules à dénombrer. La figure 3.4 illustre les limitations de la régularisation avec *a priori* de douceur en présence de différents profils (bosses et pics). Lorsque λ est faible, le pic est bien estimé mais les bosses sont sous-pénalisées et, lorsque λ augmente, le contraire se produit, jusqu'à lisser complètement le pic et détruire par la même occasion la structure du signal initial. L'objectif est de proposer une méthode capable d'estimer à la fois convenablement le pic comme sur la 1^{ère} estimation présentée en figure 3.4 ainsi que les bosses comme sur la 3^{ème} estimation. La démarche initiée ici réside dans la décomposition des signaux sur une base qui va permettre la discrimination des échelles du signal. La section suivante propose une méthode d'inversion innovante dans le domaine d'application qui couple régularisation et décomposition sur une base d'ondelettes.

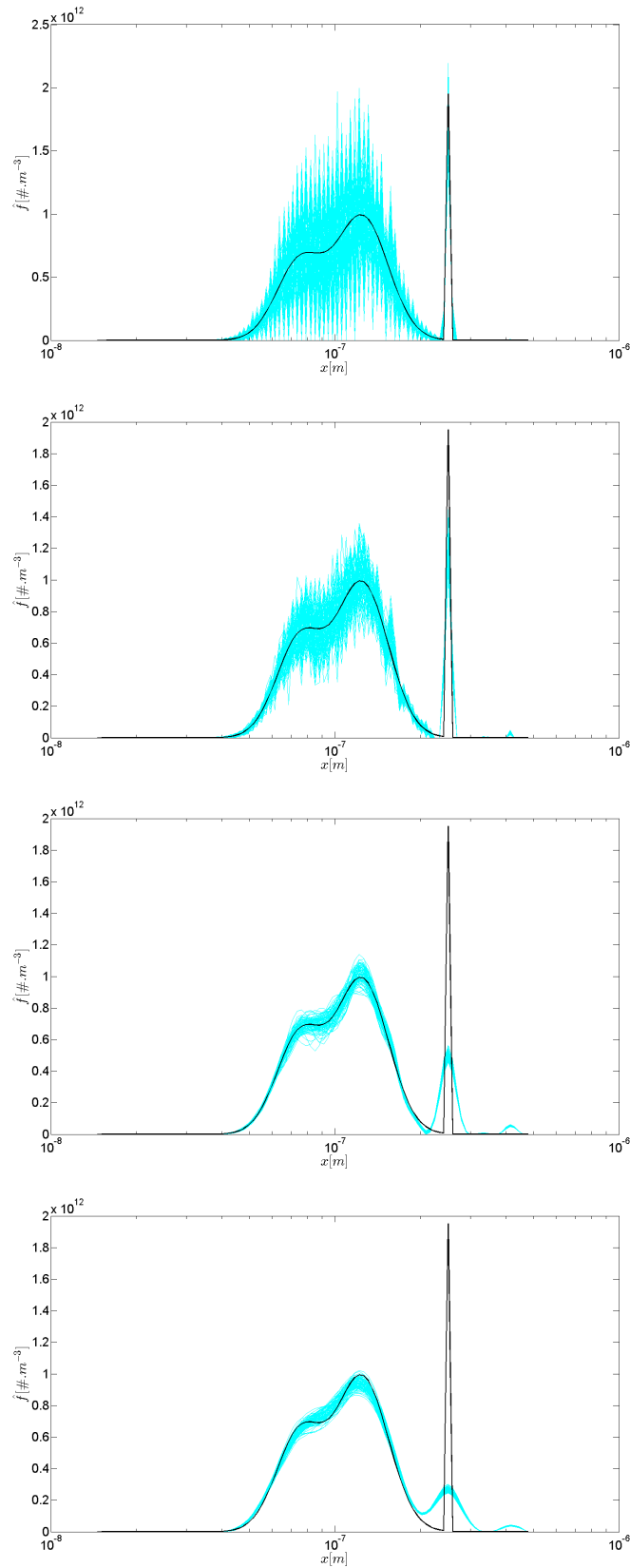


Figure 3.4: Effets de la valeur du paramètre de régularisation λ dans l'estimation de f (augmentation d'un ordre de grandeur pour λ d'une figure à l'autre sachant que $\lambda = 10^{-16}$ sur la figure du haut) dans la procédure de régularisation classique pour un signal présentant des profils à variations lentes (2 bosses) et rapide (1 pic). Le signal initial est représenté en trait noir et les estimateurs pour différentes observations sont présentés en cyan.

3.3 Régularisation et décomposition sur une base d'ondelettes

La méthode présentée dans cette section repose sur une procédure de régularisation couplée avec une décomposition sur une base d'ondelettes lorsque la granulométrie en nombre f à estimer est faite de variations rapides (le terme «pics» sera utilisé) et de variations lentes (le terme «bosses» sera employé). Nous rappelons que l'objectif est d'ajuster les poids associés à l'*a priori* : pénalisation faible au niveau des zones de pics de concentration et de pénalisation forte pour les zones de bosses.

La section 3.3.1 décrit brièvement les ondelettes et la décomposition multi-échelles, ensuite, nous définissons en section 3.3.2 l'attache aux données intervenant dans le nouveau critère à minimiser qui sera présenté dans la section 3.3.2.

La minimisation de ce critère va nécessiter l'estimation de multiples paramètres de régularisation, or, aucune méthode ne permet actuellement une estimation robuste pour ce type de problème. Une heuristique a par conséquent été développée et est décrite au travers des sections 3.3.2 à 3.3.3. Elle permet tout d'abord de détecter les zones d'apparition des pics. Ensuite, l'utilisateur est mis à contribution pour aider à la détection des bosses. Par l'intermédiaire d'une surface de réponse simulée, les paramètres de ces bosses (écart-type et amplitude) vont permettre l'estimation des paramètres de régularisation requis pour l'estimation de la granulométrie via le nouveau critère.

La section 3.3.4 compare finalement les estimateurs de la régularisation classique avec les estimateurs obtenus via la minimisation du nouveau critère sur des données simulées.

3.3.1 Les ondelettes, la transformation et la synthèse du signal

Transformer un signal revient simplement à représenter différemment ce signal sans perdre l'information qu'il contient. En traitement du signal il est commun d'utiliser la transformée de *Fourier* du signal afin d'en obtenir une nouvelle représentation temps-fréquence. Pour un signal donné f fonction du temps, la transformée de Fourier de f est donnée par la relation suivante :

$$F(w) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) \exp(-j\omega t) dt. \quad (3.27)$$

Les coefficients de la transformée de *Fourier* $F(w)$ sont alors multipliés par une exponentielle de pulsation w afin de définir les composantes harmoniques du signal original à cette fréquence :

$$f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} F(w) \exp(j\omega t) dw. \quad (3.28)$$

Une extension de la transformée de *Fourier* pour l'étude locale d'un signal est la transformée de *Fourier* à fenêtre glissante (Short-Time Fourier Transform (STFT) en anglais) qui utilise cette fois une fonction de fenêtrage g (fonction à support compact ou décroissance rapide). Ses coefficients, notés $C(\tau, w)$, sont donnés dans le cas continu par la relation suivante :

$$C(\tau, w) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) g(t - \tau) \exp(-j\omega t) dt. \quad (3.29)$$

Plutôt que de présenter le signal par sa décomposition temps-fréquence, la transformée en ondelettes (ou TO) utilise une représentation temps-échelle. La transformation repose sur la multiplication du signal initial f non plus par une exponentielle complexe mais par une ondelette ψ_w translatée et mise à l'échelle par l'intermédiaire de a (paramètre d'échelle) et b (paramètre de position). Les coefficients d'ondelettes, notés $C(a, b)$, associés au signal f sont alors donnés par la relation suivante :

$$C(a, b) = \int_{\mathbb{R}} f(t) \frac{1}{\sqrt{a}} \psi_w \left(\frac{t - b}{a} \right) dt, \quad a \in \mathbb{R}^{+*}, b \in \mathbb{R}. \quad (3.30)$$

L'ondelette a pour avantage d'être une onde ($\int_{-\infty}^{+\infty} \psi_w(t) dt = 0$) localisée dont l'énergie finie ($\int_{-\infty}^{+\infty} \psi_w(t)^2 dt < \infty$) est concentrée en temps afin d'étudier les signaux non stationnaires. La TO

fût crée initialement pour supplanter la transformée de Fourier à temps court (Short Time Fourier Transform ou STFT). En effet, alors que la STFT utilise la même résolution à tous les niveaux de fréquence du signal, différentes échelles sont analysées à différentes résolutions par la TO. Pour les petites échelles (relatives aux hautes fréquences), la TO offre une bonne résolution temporelle mais une faible résolution fréquentielle alors que pour les grandes échelles (relatives aux basses fréquences), elle fournit une bonne résolution fréquentielle mais une faible résolution temporelle. Cette résolution adaptative à l'échelle sied parfaitement aux signaux qui présentent des variations rapides pour des laps de temps courts, d'où la haute résolution temporelle. Concernant les signaux avec épisodes de basses fréquences (souvent plus long), ils ne nécessitent pas une résolution temporelle élevée. L'équation (3.30) présente la version continue de la transformation, nous nous intéressons par la suite à sa version discrète ou TOD. Dans le cas discret, la décomposition des variations du signal à différentes échelles est effectuée par l'intermédiaire d'une analyse multi-résolution ou AMR [Mallat, 1999]. La TOD est donc une AMR qui réalise cette décomposition en projetant le signal à étudier sur des sous-espaces construits par un découpage dyadique du plan temps-échelle ($a = 2^{j_w}$, $j_w \in Z$, $b = k_w a$, $k_w \in Z$). Une AMR est une famille de sous-espaces $(V_{j_w})_{j_w \in Z}$ de $L^2(R)$ répondant aux propriétés suivantes :

1. $V_{j_w} \subset V_{j_w+1} \subset \dots \subset L^2(R)$
2. $\bigcup_{j_w \in Z} V_{j_w}$ est dense dans $L^2(R)$
3. $\bigcap_{j_w \in Z} V_{j_w} = \{0\}$
4. $\forall j_w \in Z, g(x) \in V_{j_w} \Leftrightarrow g(2^{-j_w} x) \in V_{j_w+1}$
5. $\forall k_w \in Z, g(x) \in V_{j_w} \Leftrightarrow g(x - k_w) \in V_{j_w}$,
6. $\exists \phi_w(x) \in L^2(R)$ tel que $\{2^{-j_w/2} \phi_w(2^{-j_w} x - k_w)\}_{k_w \in Z}$ est une base orthonormale de V_{j_w}

La fonction ϕ_w est appelée fonction d'échelle associée à l'AMR. Conformément à la propriété 1, $\exists W_{j_w} \perp V_{j_w} \subset V_{j_w+1}$ tel que :

$$V_{j_w+1} = V_{j_w} \oplus W_{j_w}.$$

L'espace W_{j_w} est appelé espace des détails pour le sous-espace V_{j_w} . La famille de fonctions $\{2^{-j_w/2} \psi_w(2^{-j_w} x - k_w)\}_{k_w \in Z}$ est une base orthonormale de W_{j_w} et, conséquence de la propriété 4, la famille de fonctions $\{2^{-j_w/2} \psi_w(2^{-j_w} x - k_w)\}_{(k_w, j_w) \in Z^2}$ est une base d'ondelettes orthogonales de $L^2(R)$, ψ_w est couramment appelée l'ondelette mère. Si on note n_w le niveau de décomposition choisi, les coefficients d'ondelettes sont alors répartis en deux ensembles que sont les coefficients d'approximation $(cA_{j_w}^{[W]})_{j_w=1, \dots, n_w}$ et de détails $(cD_{j_w}^{[W]})_{j_w=1, \dots, n_w}$. Ils sont obtenus respectivement par projection du signal sur les sous-espaces $(V_{j_w})_{j_w=1, \dots, n_w}$ et $(W_{j_w})_{j_w=1, \dots, n_w}$. La synthèse du signal est enfin obtenue par transformation inverse de sorte que le signal f s'il est reconstruit pour le niveau de décomposition n_w prenne la forme suivante :

$$f = A_{n_w}^{[W]} + \sum_{j_w=1}^{n_w} D_{j_w}^{[W]}, \quad (3.31)$$

$A_{n_w}^{[W]}$ et $(D_{j_w}^{[W]})_{j_w=1, \dots, n_w}$ étant l'approximation et les détails reconstruits respectivement au niveau n_w et pour chaque niveau. Les ondelettes sont ici considérées comme un outil pour la création d'un nouveau type de pénalisation. Cette thèse n'offre pas de nouveautés sur ces aspects relatifs à la théorie des ondelettes, pour plus d'informations veuillez vous référer aux ouvrages suivants [Cohen and Ryan, 1995] [Mallat, 1999]. L'avantage de cette approche multi-décomposition est qu'elle va permettre dans le cadre d'une procédure de régularisation d'ajuster les pondérations à chaque échelle.

3.3.2 Régularisation avec *a priori* de douceur sur chaque échelle

Choix du critère d'adéquation aux données

Tout comme pour la régularisation classique de *Tikhonov*, le critère que nous proposons est constitué de la somme d'un terme de fidélité aux données et d'un *a priori* sur la solution à estimer. L'estimation de la granulométrie en nombre f est effectuée sur un nombre fini de points de reconstruction que sont les représentants de chaque classe de diamètres de sorte que $f \in R^n$. Rappelons tout d'abord que les observations $\left(y_i^{[r]}\right)_{i=1, \dots, m_c}^{r=1, \dots, N_r}$, N_r étant le nombre de réplicats de mesure disponibles sont telles que :

$$y_i = \int_0^{+\infty} k_i(x) f(\log(x)) d\log(x) + \epsilon_i, \quad i = 1, \dots, m_c. \quad (3.32)$$

Soient $(x_j)_{j=1, \dots, n}$ les diamètres choisis pour l'estimation de f , on pose alors $f_j = f(\log(x_j))$, $k_{ij} = k_i(x_j)$. L'évaluation numérique de l'intégrale donnée dans l'équation (3.32) est réalisée par quadrature de *Simpson* où $(w_j)_{j=1, \dots, n}$ représente le vecteur des poids de la quadrature. Ainsi, le système se réécrit sous la forme discrète $y = Hf + \epsilon$, où $y \in R^{m_c}$, $f \in R^n$, $\epsilon \in R^{m_c}$ et chaque élément (i, j) de la matrice $H \in R^{m_c \times n}$, noté $(H)_{ij}$, est tel que $(H)_{ij} = w_j k_{ij}$.

L'attache aux données est choisie ici comme la solution du problème aux moindres carrés pondérés sous la contrainte de positivité de f . En effet, f représentant une concentration en nombre de particules, on doit garantir que $f_j \geq 0$, $\forall j$. La pondération sera ici traduite par la présence de la matrice de variance/covariance des erreurs d'observations notée Γ_ϵ . En posant $\Gamma_\epsilon^{-1} = \Upsilon^t \Upsilon$ (décomposition de *Cholesky* de Γ_ϵ^{-1}), la solution à ce problème, notée $\hat{f}_{ms} \in R^n$ est définie comme suit : trouver f tel que

$$\hat{f}_{ms} = \arg \min_{f \geq 0} [\|\Upsilon(Hf - y)\|^2]. \quad (3.33)$$

Le problème défini par l'équation (3.33) est une minimisation sous contrainte dont la résolution peut-être effectuée par l'algorithme du point intérieur [Fiacco and McCormick, 1990] qui consiste à approcher le problème de minimisation sous contraintes par un problème de minimisation sans contraintes pour lequel toutes les solutions sont dans le domaine acceptable, c'est à dire qu'elles vérifient $\hat{f}_j \geq 0$, $\forall j$. Une autre méthode pour résoudre ce problème est l'algorithme NNLS (pour Non Negative Least-Squares) développé par [Bro and De Jong, 1997]. Cet algorithme sera préféré pour l'estimation de la solution du problème de minimisation sous contraintes que nous définirons dans la section suivante. L'estimateur \hat{f}_{ms} diffère de la solution au sens classique des moindres carrés par la connaissance de la dispersion des observations. Cette dispersion sera modélisée pour $N_r = 1$ et sera inférée le cas échéant comme nous le verrons dans les sections 4.2.4 et 4.2.4 du chapitre 4 de ce manuscrit.

Définition du nouvel *a priori*

Conscient des limitations relatives à l'utilisation d'un *a priori* homogène dans une procédure de régularisation classique, nous proposons de construire un *a priori* afin de pénaliser différemment chaque échelle du signal. Une décomposition multi-échelles sur une base d'ondelettes \mathcal{W} est proposée. Soient $A_{n_w}^{[\mathcal{W}]}$ l'approximation reconstruite au niveau n_w et $\left(D_{l_w}^{[\mathcal{W}]}\right)_{l_w=1, \dots, n_w}$ les détails reconstruits du signal pour les niveaux de décomposition allant de 1 à n_w associés à l'ondelette \mathcal{W} . La pénalisation est alors construite comme dépendante de l'échelle en définissant non plus un paramètre de régularisation λ mais cette fois un jeu de paramètres de régularisation $\mathcal{L} = \{(\lambda_{l_w, d})_{l_w=1, \dots, n_w}, \lambda_{n_w, a}\}$. Un *a priori* de douceur pour chaque échelle est modélisé par l'intermédiaire de la matrice D_2 qui n'est autre que l'approximation par différences finies de l'intégrale de l'équation (3.18) pour un nouveau critère de régularisation qui s'exprime par le problème de minimisation suivant : trouver f tel que

$$\hat{f} = \arg \min_{f \geq 0} [\|\Upsilon(Hf - y)\|^2 + \sum_{l_w=1}^{n_w} \lambda_{l_w, d} \|D_2 D_{l_w}^{[\mathcal{W}]}\|^2 + \lambda_{n_w, a} \|D_2 A_{n_w}^{[\mathcal{W}]}\|^2]. \quad (3.34)$$

Les détails du 1^{er} niveau ($D_1^{[W]}$) permettent de discriminer le bruit haute fréquence du signal utile. Cependant, lorsque la solution à estimer f présente des pics et du bruit haute fréquence, tous deux se retrouvent dans l'expression de $D_1^{[W]}$. Les petites échelles vont donc être sensibles à de larges pénalisations (fortes valeurs de $\lambda_{1,d}$) qui auront pour effet de lisser les pics. Suivant cette remarque, un traitement particulier est opéré sur le 1^{er} niveau de détail pour détecter les pics et éviter ce biais induit par une trop forte pénalisation. De plus, un certain nombre de points sont à éclaircir quant-à la définition de ce nouveau critère :

1. Quelle ondelette W choisir pour la décomposition?
2. Quel niveau de décomposition n_w est le plus adapté?
3. Comment estimer le jeu de paramètres de régularisation?

Partant de distributions granulométriques simulées, les prochaines sections détaillent l'heuristique développée afin d'estimer f suivant cette nouvelle approche en répondant par la même occasion aux questions soulevées.

Simulations numériques des distributions granulométriques

Pour démontrer le gain de cette nouvelle méthode, une famille de distributions est simulée. La simulation va ainsi permettre de comparer les estimations effectuées par la méthode proposée avec les méthodes classiques de régularisation ce qui est impossible sur données réelles car il n'existe aucun aérosol de référence à ce jour. Comme suggéré dans [Talukdar and Swihart, 2003], les distributions granulométriques peuvent généralement être représentées comme une somme de distributions normales et log-normales. Ainsi, la fonction f est construite de la façon suivante :

$$f(x) = \sum_{i=1}^I A_i \exp\left(\frac{-(x - \mu_i)^2}{2\sigma_i^2}\right) + \sum_{j=1}^{I'} A'_j \exp\left(\frac{-\log^2\left(\frac{x}{\mu_j}\right)}{2\log^2(\sigma'_j)}\right), \quad (3.35)$$

où A_i , A'_j sont des constantes d'échelle, I et I' correspondent au nombre de distributions normales et lognormales respectivement considérées, μ_i , μ'_j , σ_i , σ'_j représentent respectivement la moyenne et l'écart-type de la $i^{\text{ème}}$ distribution normale et $j^{\text{ème}}$ lognormale. Chaque distribution simulée sera composée de 2 normales ($I = 2$) et d'une lognormale ($I' = 1$). Pour représenter cette famille, 9 paramètres sont donc considérés comme des variables aléatoires uniformément distribuées. Soit $\mathcal{S} = \{A_1, A_2, A'_1, \mu_1, \mu_2, \mu'_1, \sigma_1, \sigma_2, \sigma'_1\}$, les variations de chacun des éléments de \mathcal{S} sont modélisées comme suit :

- $A_1 \sim \mathcal{U}([5 \times 10^{11}, 2 \times 10^{12}])$
- $A_2 \sim \mathcal{U}([5 \times 10^{11}, 2 \times 10^{12}])$
- $\mu_1 \sim \mathcal{U}([50 \times 10^{-9}, 70 \times 10^{-9}])$
- $\mu_2 \sim \mathcal{U}([170 \times 10^{-9}, 250 \times 10^{-9}])$
- $\sigma_1 \sim \mathcal{U}([1 \times 10^{-9}, 10 \times 10^{-9}])$
- $\sigma_2 \sim \mathcal{U}([1 \times 10^{-9}, 10 \times 10^{-9}])$
- $A'_1 \sim \mathcal{U}([1 \times 10^{11}, 1 \times 10^{12}])$
- $\mu'_1 \sim \mathcal{U}([80 \times 10^{-9}, 150 \times 10^{-9}])$
- $\sigma'_1 \sim \mathcal{U}([1.1, 1.3])$

Les distributions granulométriques sont alors simulées en tirant aléatoirement chacun des paramètres de \mathcal{S} . La figure 3.5 illustre quelques échantillons de f . Connaissant f , des observations sont générées

à partir du modèle de dispersion décrit dans le premier chapitre. La prochaine section s'intéresse au premier niveau de détails $D_{1,ms}^{[\mathcal{W}]}$ et à la détection des pics.

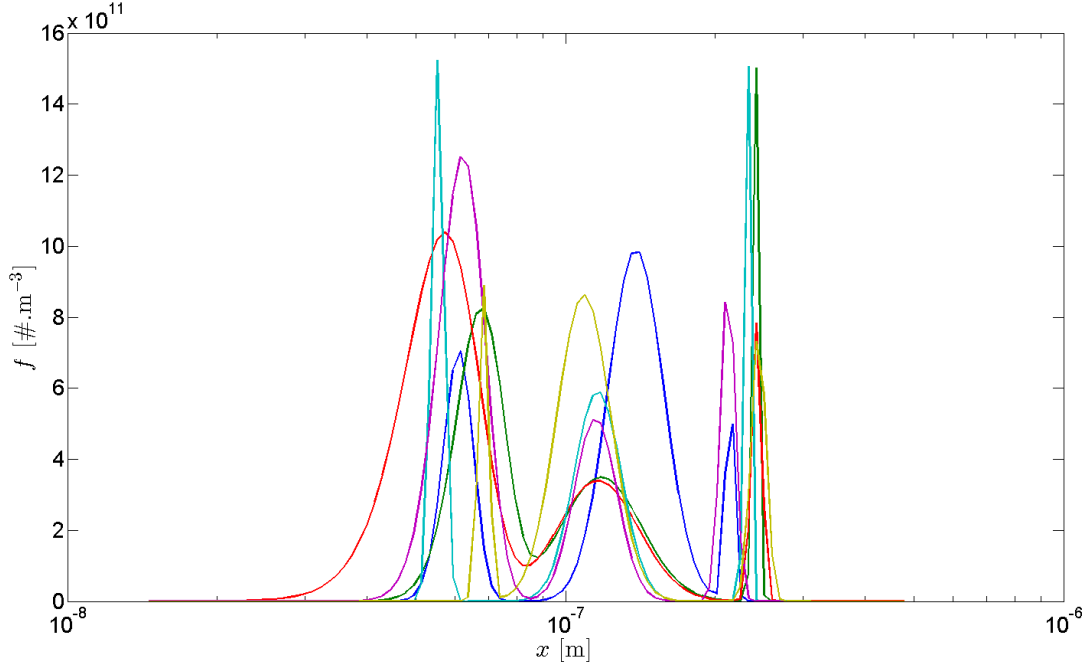


Figure 3.5: Exemples de distributions granulométriques simulées.

Détection des pics sur le premier niveau de détail $D_{1,ms}^{[\mathcal{W}]}$

Avant de distinguer les ondelettes et de statuer sur le niveau de décomposition à choisir, le premier traitement à opérer est la discrimination des régions d'apparition des pics. En examinant un exemple de distribution f , nous allons illustrer l'utilité de la décomposition sur la base d'ondelette \mathcal{W} pour cette étape de détection. Dans un premier temps, l'ondelette de *Daubechies* d'ordre 4 (db4) est considérée. Partant d'une distribution simulée présentant un pic et deux bosses (cf figure 3.6), 500 observations sont générées, une estimation naïve \hat{f}_{ms} par moindres-carrés pondérés pour chaque observation est obtenue et enfin le 1^{er} niveau de détail est reconstruit pour chaque observation. Les figures 3.6 à 3.9 illustrent ce cheminement.

La figure 3.9 révèle le procédé de détection mise en place. Le premier niveau de détail reconstruit confond hautes fréquences et pics de concentration. On comprend donc plus aisément pourquoi une pénalisation forte sur ce niveau entraîne le lissage du pic. La tâche à accomplir est donc la détermination de la zone à ne pas trop régulariser, autrement dit la zone du pic. L'heuristique développée pour la détection de cette région étudie le signe de $D_{1,ms}^{[\mathcal{W}]}$. La région détectée est constituée des points pour lesquels la probabilité de conservation du signe est supérieure ou égale à 95%. Si on note S_x l'échantillon des signes de $D_{1,ms}^{[\mathcal{W}]}$ pour un ensemble d'observations issues d'une même distribution granulométrique f pour un point de l'espace des diamètres x donné (notations pour les signes : signe positif noté 1, signe négatif noté -1), x est considéré comme appartenant à la zone du pic si et seulement si :

$$(P(S_x = 1) \quad \text{ou} \quad P(S_x = -1)) \geq 0.95. \quad (3.36)$$

NB : on dispose ici de 500 observations simulées pour déterminer les zones d'apparition des pics, or dans certaines expériences, une seule observation est disponible. Dans ce cas, le modèle de bruit décrit au chapitre 4 en section 4.2.4 sera utilisé pour la simulation d'un grand nombre d'observations pour la phase de détection des pics.

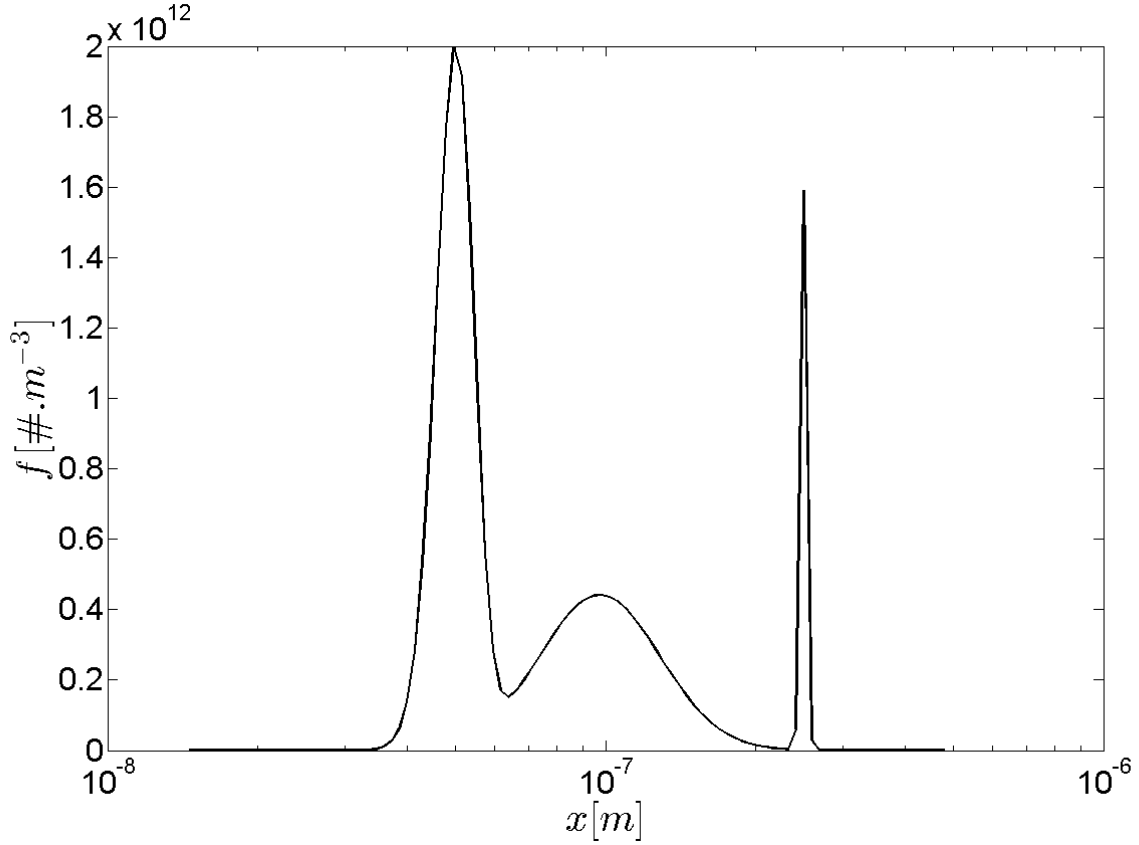


Figure 3.6: Exemple de distribution simulée avec 1 pic et 2 bosses.

Ce critère est appliqué à l'ensemble des points de reconstruction $(x_j)_{j=1,\dots,n}$. Ainsi, le résultat obtenu par ce critère est un ensemble de points réunis en groupe d'intervalles $\mathcal{I} = \bigcup_{i=1}^{n_I} [x_{a_i}, x_{b_i}]$, où n_I représente le nombre d'intervalles détectés. Connaissant à présent les régions d'apparition des pics, il s'agit d'opérer une correction de la pénalisation associée à ce niveau de détail reconstruit.

Correction du paramètre de régularisation associé à la pénalisation du premier niveau de détail

Le critère défini par l'équation (3.34) suppose que l'ensemble des paramètres de régularisation $\mathcal{L} \in R^{n_w+1}$. Connaissant les zones d'apparition des pics \mathcal{I} , l'objectif de cette section va consister à remplacer le paramètre de régularisation scalaire $\lambda_{1,d}$ associé au 1^{er} niveau de détail reconstruit par une fonction poids (qui sera évaluée sur l'ensemble des diamètres $(x_j)_{j=1,\dots,n}$) afin de régulariser plus faiblement les régions des pics. Un premier choix peut-être une fonction par morceaux $\lambda_{1,d}(x)$ telle que :

$$\lambda_{1,d}(x) = \begin{cases} \hat{\lambda}_{1,d}^{init}, & \text{if } x \notin \mathcal{I}, \\ \hat{\lambda}_{1,d}^{init} \kappa, & \text{if } x \in \mathcal{I}, \end{cases} \quad (3.37)$$

où $\hat{\lambda}_{1,d}^{init}$ est le paramètre de régularisation initialement estimé et κ est une constante arbitraire choisie pour assurer une bonne reconstruction du pic (le choix est ici $\kappa = 10^{-5}$). Néanmoins, un tel choix pour la fonction poids ne convient pas à la procédure de régularisation mise en œuvre car un changement brusque de pénalisation engendre des discontinuités de l'estimateur \hat{f} . Afin de solutionner ce problème de transition, un lissage par spline cubique est opéré comme décrit par [Barry, 1973]. La figure 3.10 montre la fonction par morceaux $\lambda_{1,d}(x)$ et la fonction lissée par le spline cubique associée pour une fonction f à estimer présentant 2 pics. Le lissage assure la continuité de la fonction poids pour la régularisation et supprime les discontinuités sur l'estimation finale. L'intégration de la fonction

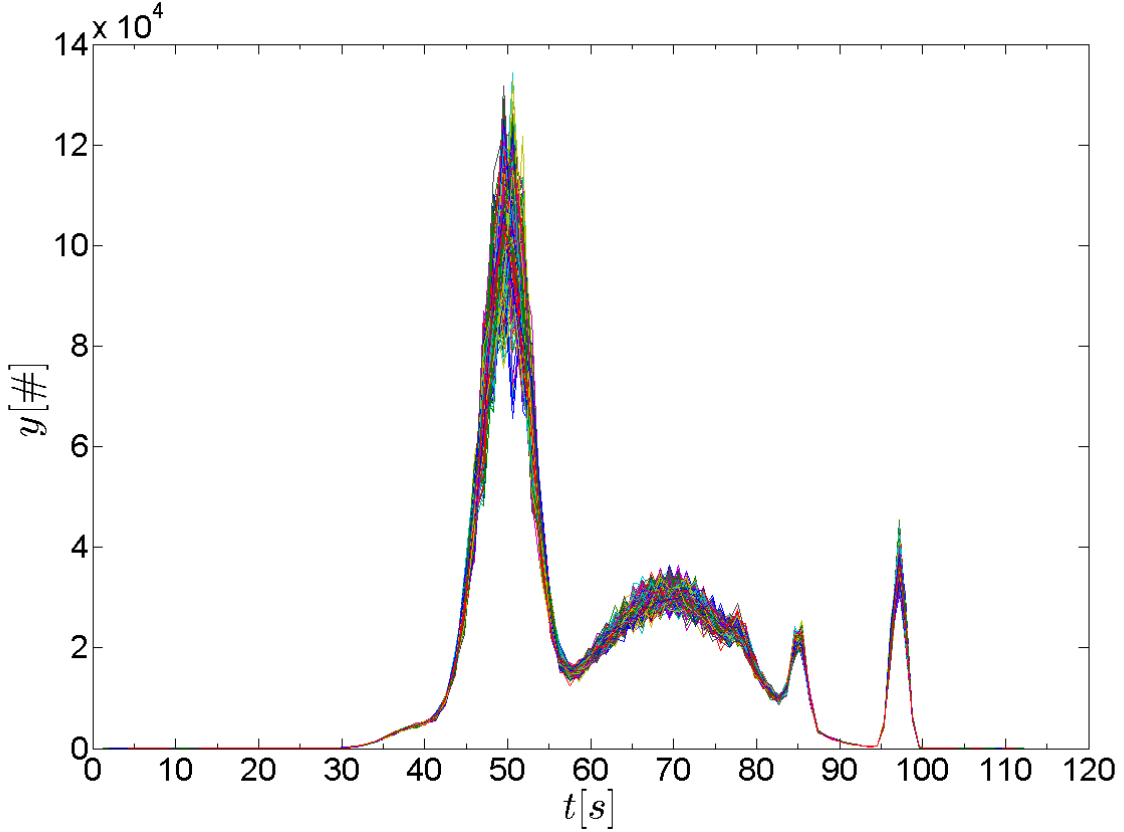


Figure 3.7: 500 observations simulées (nombre de particules comptées en fonction du temps) associées à la distribution f de la figure 3.6.

poids dans le critère global est obtenue en évaluant la fonction aux points de reconstruction de f , la transformant ainsi en vecteur de poids noté $\Lambda_{1,d}$.

Le nouveau critère prend alors la forme suivante :

$$\hat{f} = \arg \min_{f \geq 0} [\|\Upsilon(Hf - y)\|^2 + \Lambda_{1,d} \|D_2 D_1^{[\mathcal{W}]}\|^2 + \sum_{l_w=2}^{n_w} \lambda_{l_w,d} \|D_2 D_{l_w}^{[\mathcal{W}]}\|^2 + \lambda_{n_w,a} \|D_2 A_{n_w}^{[\mathcal{W}]}\|^2]. \quad (3.38)$$

Il est à noter que l'ondelette \mathcal{W} a été choisie arbitrairement dans ce cas. La prochaine section offre une comparaison de différentes ondelettes pour plusieurs niveaux de décomposition n_w , répondant par la même occasion aux questions 1 et 2 soulevées en section 3.3.2.

Sélection de l'ondelette \mathcal{W} et du niveau de décomposition n_w

Le nouveau critère sous-entend un choix pour la base d'ondelettes. Une justification numérique pour ce choix de base est effectuée ici. L'intérêt est de discriminer à la fois la base la plus adaptée à l'estimation de f après inversion et de statuer d'un niveau de décomposition n_w . Pour évaluer les performances de l'estimation, il est nécessaire de définir un critère de performance. Le critère de performance globale le plus couramment employée est celui de l'erreur quadratique moyenne, notée MSE (Mean Square Error en anglais). Nous utilisons une version normalisée du critère MSE , noté \underline{MSE} et défini comme suit :

$$\underline{MSE} = \frac{\sum_{j=1}^n \|\hat{f}_j - f_j\|^2}{\sum_{j=1}^n \|f_j\|^2}. \quad (3.39)$$

NB : f_j et \hat{f}_j font références aux valeurs respectivement de la fonction originale f et à l'estimateur \hat{f} au point de reconstruction $\log(x_j)$.

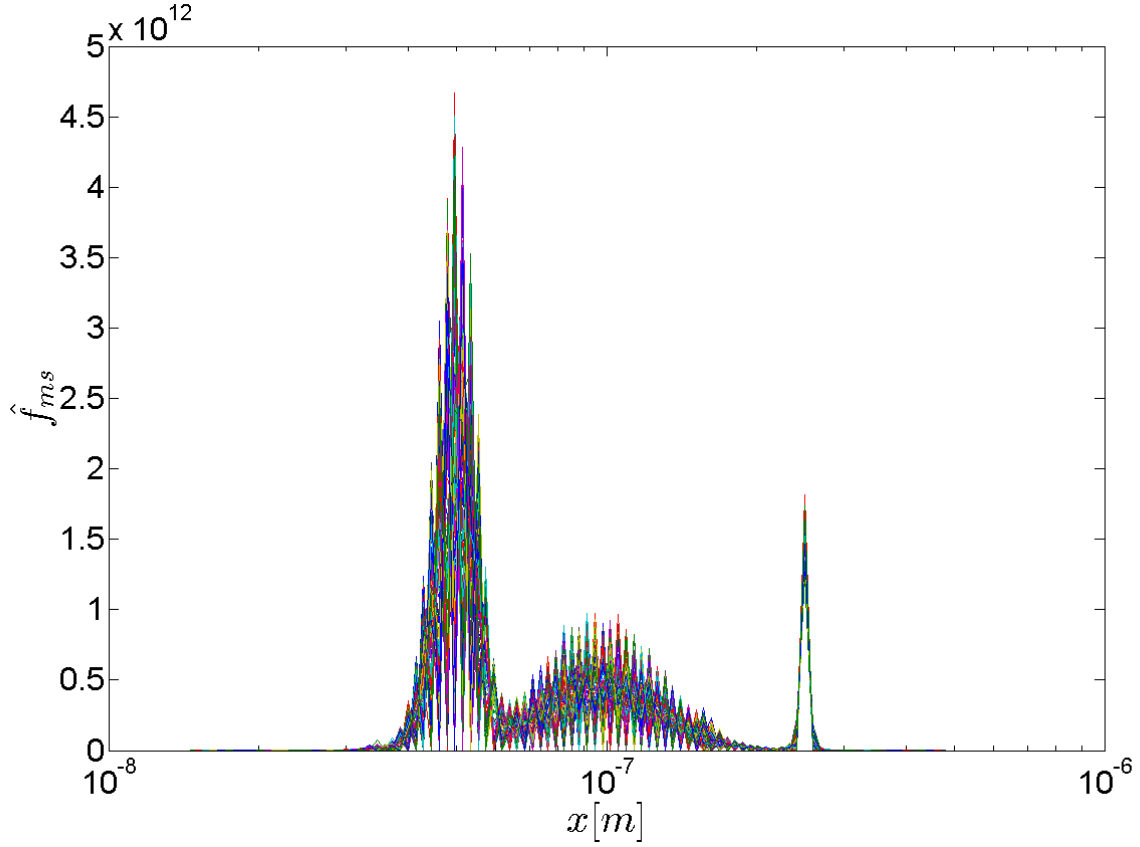


Figure 3.8: 500 estimations par méthode des moindres-carrés connaissant le jeu d'observations de la figure 3.7.

La procédure utilisée pour la comparaison requiert la connaissance des poids de régularisation. Souhaitant choisir la meilleure ondelette \mathcal{W} indépendamment de l'erreur induite par le choix des poids, ceux-ci sont calibrés pour chaque distribution simulée f . La calibration est effectuée en simulant par Monte-Carlo un grand nombre de paramètres de régularisation et en choisissant ceux qui minimisent le critère MSE. Une contrainte ajoutée à l'estimation de ces paramètres est leur hiérarchisation. En effet, on souhaite pénaliser plus fortement les grandes échelles, ainsi, le choix de modélisation suivant est statué :

$$\hat{\lambda}_{1,d} \geq \hat{\lambda}_{2,d} \geq \dots \geq \hat{\lambda}_{l_w,d} \geq \dots \geq \hat{\lambda}_{n_w,d} \geq \hat{\lambda}_{n_w,a}. \quad (3.40)$$

Ainsi, pour $n_w = 1$, les estimations $\hat{\lambda}_{1,d}$ et $\hat{\lambda}_{1,a}$ sont réalisées pour chaque réalisation. La recherche est alors effectuée sur un triangle pour respecter la contrainte hiérarchique. Pour $n_w = 2$, la recherche est réalisée sur un tétraèdre (ou 3-simplex) et enfin sur un 4-simplex pour $n_w = 3$ (ordre de décomposition maximal considéré). Le nombre de simulations est alors augmentée d'un ordre de grandeur à mesure que la dimension du domaine d'exploration augmente (100 points pour $n_w = 1$, 1000 points pour $n_w = 2$, 10000 points pour $n_w = 3$). Reste à présent à définir les bases d'ondelettes choisies pour la comparaison.

Haar définit la première base d'ondelettes en 1910. Depuis, une large variété d'ondelettes ont vu le jour. Parmi les ondelettes décrites, les plus célèbres sont celles de *Daubechies* [Daubechies, 1992], les *Coiflets* [Daubechies, 1994a], les *Symlets* [Daubechies, 1994b] ou celle de Meyer [Abr, 1997]. Le jeu d'ondelettes choisies pour la comparaison numérique est le suivant :

- *Daubechies*: db4 à db8,
- *Symlets*: sym4 à sym8,

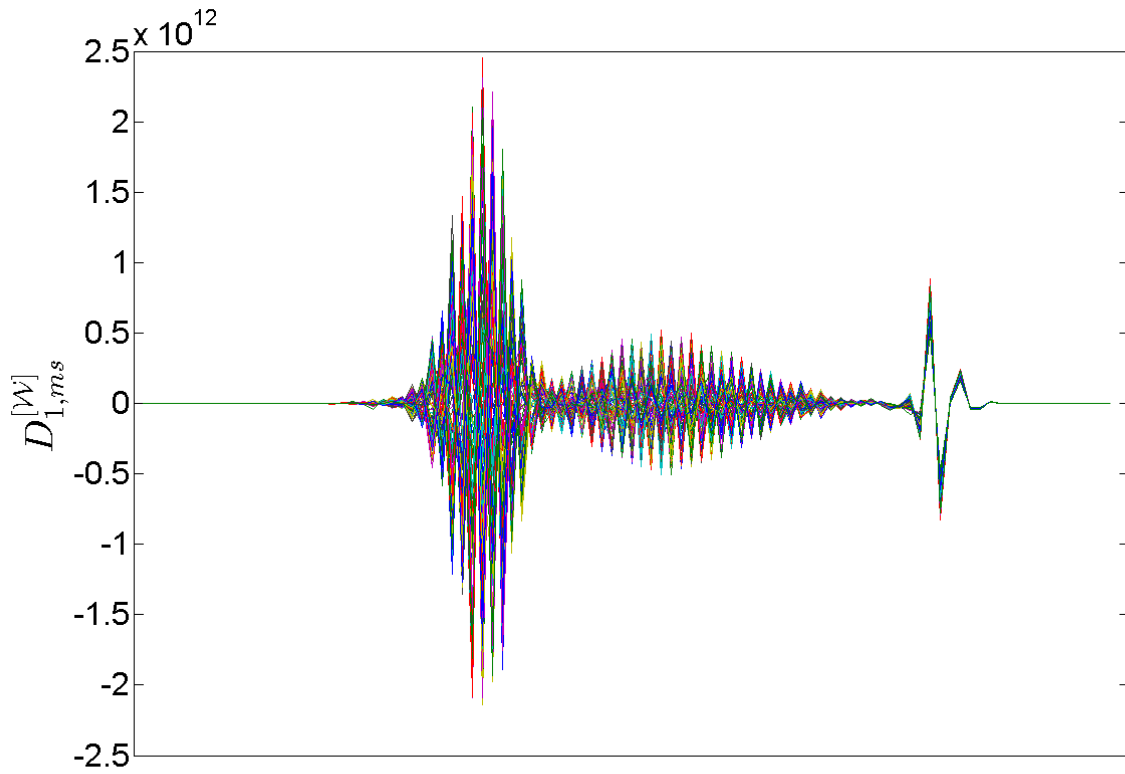


Figure 3.9: 500 détails reconstruits au 1^{er} niveau à partir des estimations de la figure 3.8.

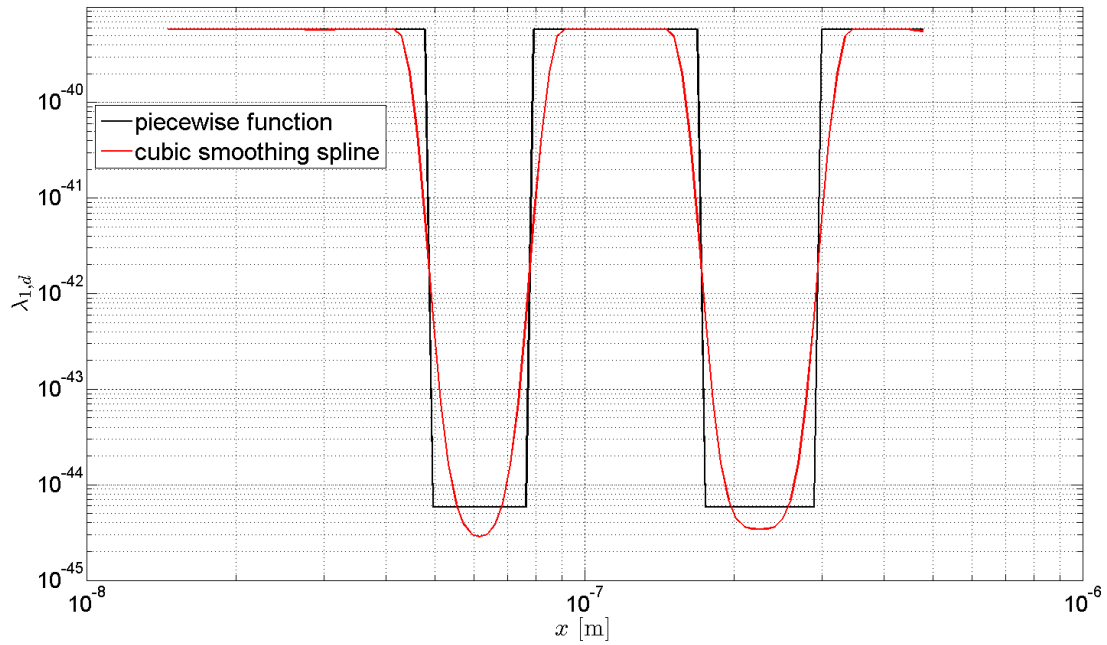


Figure 3.10: Exemple de fonction par morceaux $\lambda_{1,d}(x)$ et son lissage par le spline cubique pour une distribution présentant 2 pics.

- *Coiflets*: coif1 à coif5,
- *Meyer*: dmey,
- *Haar*: haar.

Soit $(f^{[q]})_{q=1,\dots,N_q}$ l'ensemble des distributions simulées, le jeu d'observations générées pour une distribution q donnée est noté $(y^{[q][r]})_{r=1,\dots,N_r}$ et enfin l'estimation pour la $q^{ème}$ distribution et pour chacune des observations est notée $(\hat{f}^{[q][r]})_{r=1,\dots,N_r}$. Le critère de sélection de l'ondelette choisi, noté \overline{MSE} , est défini comme la moyenne générale sur toutes les observations et toutes les distributions du critère MSE :

$$\overline{MSE} = \frac{1}{N_q N_r} \sum_{q=1}^{N_q} \sum_{r=1}^{N_r} \sum_{j=1}^n \frac{|\hat{f}_j^{[q][r]} - f_j^{[q]}|^2}{|f_j^{[q]}|^2}. \quad (3.41)$$

NB : pour une distribution f donnée, les pondérations sont calculées et utilisées pour l'ensemble des observations issues de f avec le traitement décrit en section 3.3.2 pour l'établissement du vecteur des poids pour le 1^{er} niveau de détail reconstruit.

Le tableau 3.1 présente les résultats obtenus en terme de \overline{MSE} pour chacune des ondelettes aux niveaux de décomposition considérés. Les éléments en rouge dans le tableau indiquent les valeurs minimales du critère de sélection \overline{MSE} pour chaque niveau de décomposition. Les résultats indiquent que, hormis pour l'ondelette de *Haar*, les autres ondelettes proposent des estimations comparables. De plus, un résultat important est qu'augmenter l'ordre de décomposition n'assure pas de meilleurs estimations. Ainsi, le premier ordre de décomposition est choisi, impliquant une estimation de seulement 2 paramètres de régularisation. Bien que le choix de l'ondelette n'ait pas d'influence significative sur l'estimation finale, sur la base de ces résultats, une *Symlet* d'ordre 5 (sym5) est sélectionnée et sera utilisée dans le reste de cette dissertation.

Ayant apporté des réponses aux questions 1 et 2 posées précédemment en section 3.3.2, il est à présent temps de se focaliser sur l'estimation des paramètres de régularisation, désormais au nombre de 2, réduisant le critère global à minimiser à l'expression suivante :

$$\hat{f} = \arg \min_{f \geq 0} [\|\Upsilon(Hf - y)\|^2 + \lambda_{1,a} \|D_2 A_1^{[sym5]}\|^2 + \Lambda_{1,d} \|D_2 D_1^{[sym5]}\|^2]. \quad (3.42)$$

Rappelons que $\Lambda_{1,d}$ est le vecteur des poids associés au premier niveau de détail reconstruit qui requiert la valeur estimée de $\lambda_{1,d}$ dans son expression. La prochaine section présente la méthodologie développée pour l'estimation des 2 paramètres de régularisation : $\lambda_{1,d}$ et $\lambda_{1,a}$.

3.3 Régularisation et décomposition sur une base d'ondelettes

Tableau 3.1: Résultats numériques de la comparaison des ondelettes pour $N_q = 100$, $N_r = 500$ et $n_w = 1, 2, 3$.

Type d'ondelette	Critère \overline{MSE}	Niveau de décomposition
db4	0.0872	1
db5	0.0915	1
db6	0.0916	1
db7	0.0890	1
db8	0.0896	1
sym4	0.0929	1
sym5	0.0860	1
sym6	0.0918	1
sym7	0.0859	1
sym8	0.0917	1
coif1	0.0930	1
coif2	0.0927	1
coif3	0.0926	1
coif4	0.0929	1
coif5	0.0927	1
dmey	0.0903	1
haar	0.0961	1
db4	0.0918	2
db5	0.0962	2
db6	0.0934	2
db7	0.0900	2
db8	0.0918	2
sym4	0.0927	2
sym5	0.0860	2
sym6	0.0910	2
sym7	0.0900	2
sym8	0.0912	2
coif1	0.0941	2
coif2	0.0921	2
coif3	0.0923	2
coif4	0.0928	2
coif5	0.0924	2
dmey	0.0907	2
haar	0.0962	2
db4	0.0957	3
db5	0.0969	3
db6	0.0927	3
db7	0.0940	3
db8	0.0918	3
sym4	0.0966	3
sym5	0.0859	3
sym6	0.0903	3
sym7	0.0894	3
sym8	0.0905	3
coif1	0.0978	3
coif2	0.0914	3
coif3	0.0915	3
coif4	0.0924	3
coif5	0.0917	3
dmey	0.0949	3
haar	0.0959	3

3.3.3 Estimation de multiples paramètres de régularisation

L'estimation de multiples paramètres de régularisation est une tâche complexe pour laquelle, à notre connaissance, seule la généralisation du critère de la courbe en L à n dimensions [Belge et al., 2002] a permis d'entrevoir une solution. Seulement cette méthode nécessite le calcul de la courbure d'hypersurfaces et par conséquent rallongerait considérablement le temps de calcul pour l'obtention d'une estimation de f . De plus, la robustesse de la méthode est faible en présence de bruit d'observations important (remarque déjà vraie pour l'estimation d'un seul paramètre car le coin de la courbe biais versus variance n'est pas forcément bien défini ou encore de multiples coins apparaissent) comme c'est le cas ici. Il est donc nécessaire de définir une méthodologie pour l'estimation de $\lambda_{1,d}$ et $\lambda_{1,a}$ dans l'équation (3.42). Connaissant respectivement la position des pics et la correction à appliquer sur la pénalisation associée au premier niveau de détail reconstruit (sections 3.3.2 et 3.3.2), il faut maintenant estimer les poids

de régularisation associés aux régions présentant des variations lentes. Ces «bosses» présentent des variations d'amplitude et de dispersion autour du mode. Il s'agit de lier ces variations à l'estimation des 2 paramètres de régularisation par l'intermédiaire d'une surface de réponse. Autrement dit, les bosses étant modélisées par des distributions log-normales, connaissant les paramètres μ' , σ' et A' , nous serons en mesure d'estimer $\lambda_{1,d}$ et $\lambda_{1,a}$. Tout d'abord, la position de la bosse sur la gamme des diamètres n'influe aucunement sur la pénalisation à apporter dans la procédure de régularisation. Pour cette raison, l'exploration de l'espace des paramètres s'en voit réduit d'une dimension ne considérant plus que σ' et A' . Dans un premier temps, la surface de réponse sera créée à partir de l'exploration d'un espace à 2 dimensions en utilisant un plan d'expériences qui fait l'objet du paragraphe suivant.

Plan d'expériences et surface de réponse associée

La planification d'expériences est utilisée ici afin de comprendre les variations des poids de régularisation pour différentes valeurs prises par les paramètres d'amplitude (en concentration) et de dispersion (en diamètres). Les poids deviennent alors fonction de σ' et A' de sorte que $\lambda_{1,a} = \lambda_{1,a}(\sigma', A')$ et $\lambda_{1,d} = \lambda_{1,d}(\sigma', A')$. De nombreux plans d'expériences ont vu le jour depuis la création des plans factoriels par [Fisher, 1926]. Pour plus d'informations sur les plans d'expériences, voir [Box et al., 1978], [Montgomery, 1984] ou [Taguchi, 1986]. Un plan factoriel complet à 2 facteurs et 10 niveaux est utilisé ici pour caractériser les pondérations. La discrétisation des 2 facteurs illustrée en figure 3.11 est respectivement linéaire pour σ' ($\min(\sigma') = 1.1$, $\max(\sigma') = 2$) et linéaire en échelle logarithmique pour A' ($\min(A') = 10^{10}$, $\max(A') = 10^{12}$). A chaque point du plan factoriel complet va correspondre une distribution simulée f pour un total sur tout le plan de 10^2 simulations présentées en figure 3.12.

Ensuite, pour chacune des distributions simulées, $\lambda_{1,a}(\sigma', A')$ sera estimé. L'estimation est réalisée de la même manière qu'en section 3.3.2 pour la sélection de l'ondelette mère (le paramètre est estimé comme minimisant le critère MSE et ceci pour chaque fonction f simulée). Le même plan et le même procédé sont utilisés pour l'estimation de $\lambda_{1,d}(\sigma', A')$ en conservant la contrainte $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A') \geq \hat{\lambda}_{1,a}(\sigma', A')$, $\forall(\sigma', A')$.

Les figures 3.13 et 3.14 montrent respectivement les valeurs calculées de $\lambda_{1,a}$ et $\lambda_{1,d}$ sur les nœuds définis par le plan factoriel complet et la surface de réponse calculée par interpolation linéaire entre les nœuds.

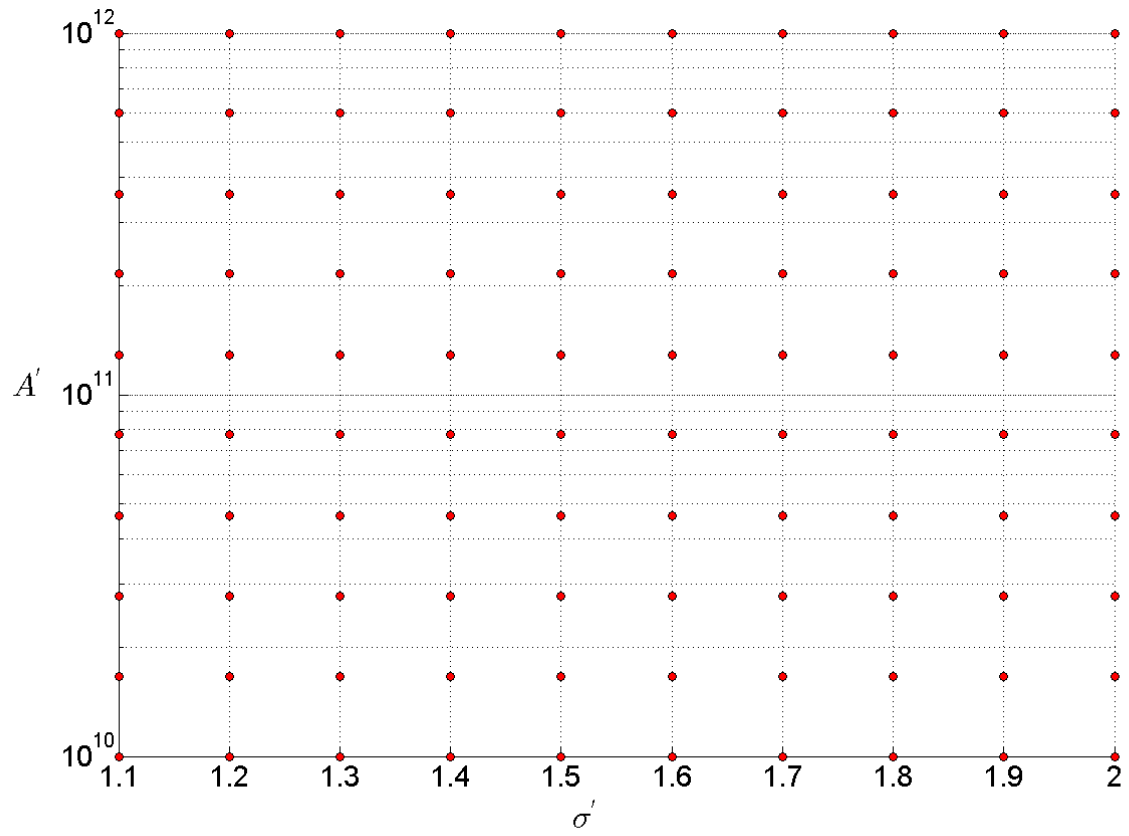


Figure 3.11: Plan factoriel complet pour le pavage de l'espace à 2 dimensions (σ', A') .

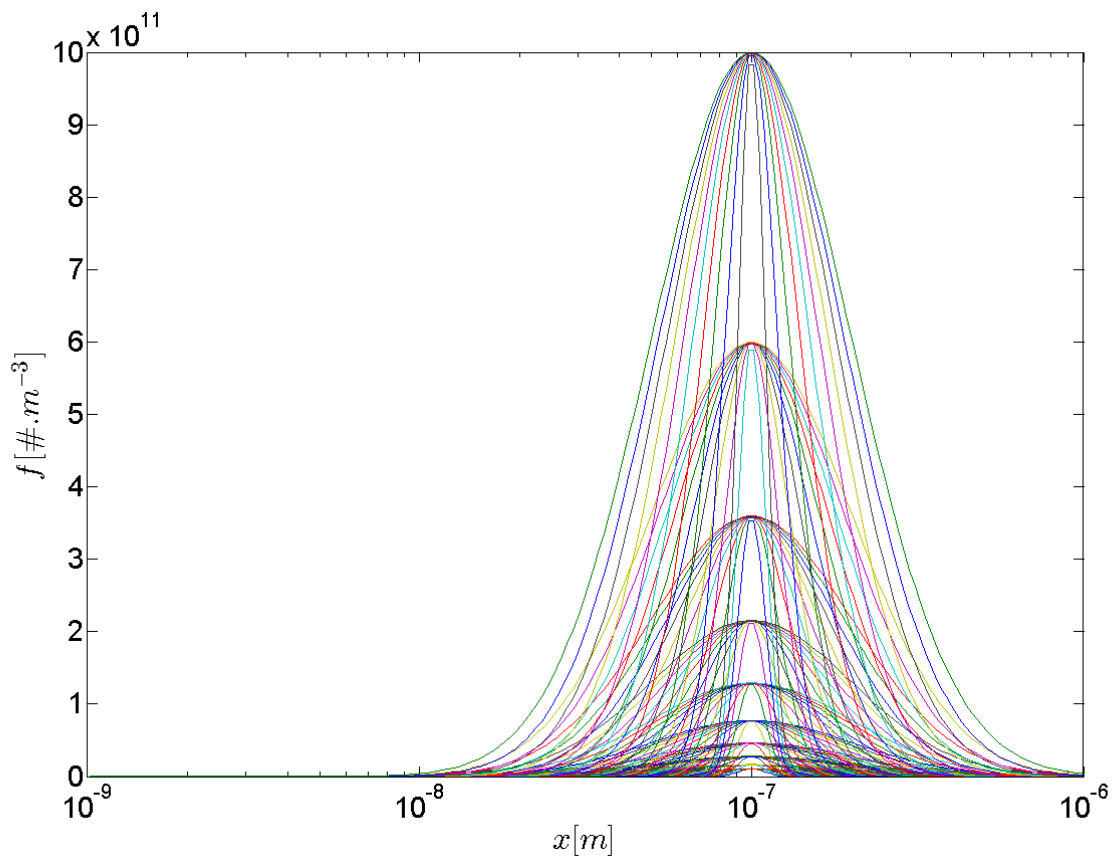


Figure 3.12: Distributions simulées selon le plan factoriel complet (figure 3.11).

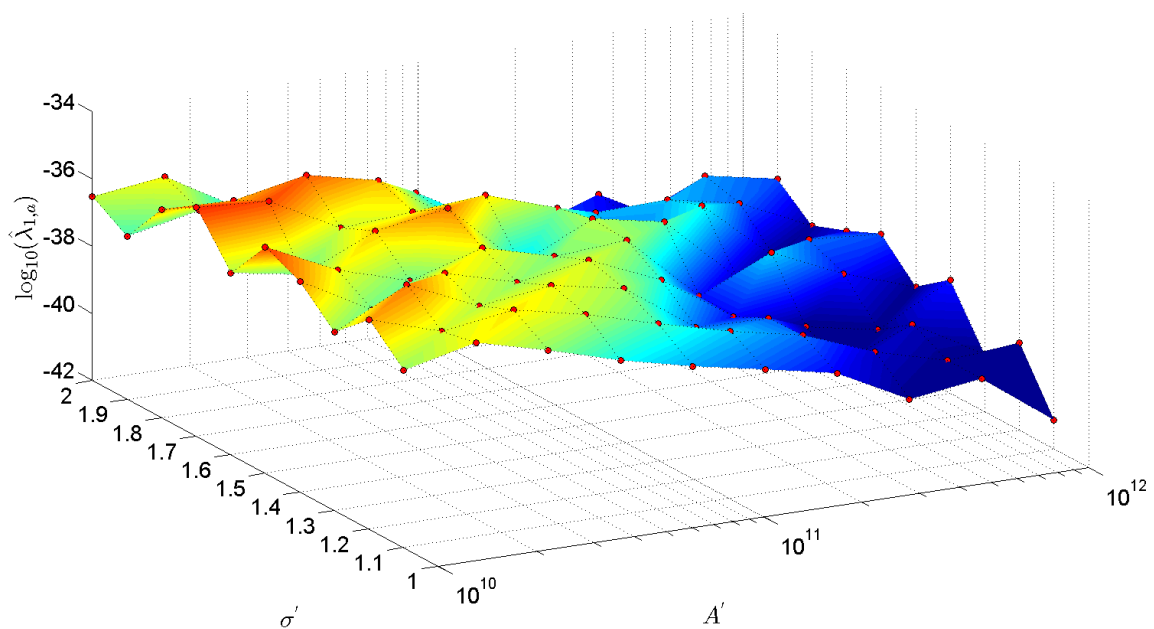


Figure 3.13: Surface de réponse pour $\hat{\lambda}_{1,a}(\sigma', A')$ (interpolation linéaire entre les nœuds).

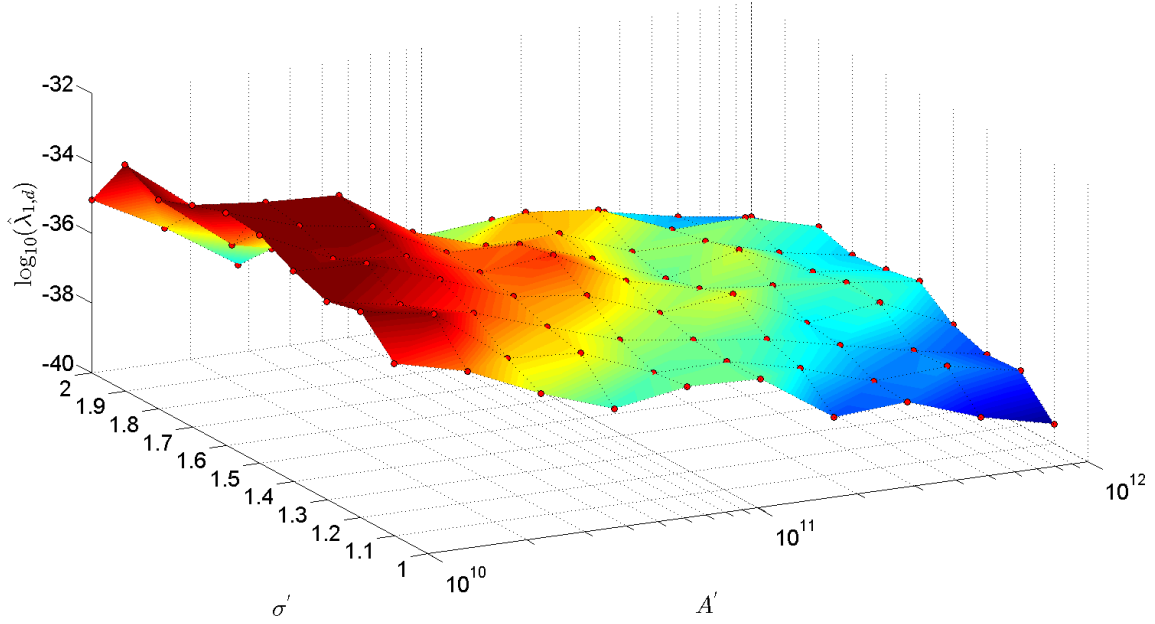


Figure 3.14: Surface de réponse pour $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A')$ (interpolation linéaire entre les nœuds).

Les résultats montrent un comportement non monotone de chacune des surfaces de réponse. Ceci est due au fait que l'erreur quadratique moyenne comme critère de sélection des poids offrent de multiples minimas à différents ordres de grandeur.

Toutefois, l'intérêt d'une telle approche n'est pas la détermination de l'optimum mais plutôt la capture d'une tendance générale. Pour cette raison, les perturbations dans l'estimation des poids sont dès lors considérées comme une composante de bruit et une nouvelle surface de réponse est générée par lissage de la surface initiale par l'intermédiaire de la fonction *gridfit* sous MATLAB [D'Errico, 2006] qui permet une extrapolation douce entre les nœuds du pavage (σ', A') en laissant à l'utilisateur le soin de choisir le degré de lissage. Une telle procédure va permettre d'adoucir les transitions.

Les figures 3.15 et 3.16 offrent une représentation bidimensionnelle de $\hat{\lambda}_{1,a}(\sigma', A')$ avant et après lissage. De la même manière, les figures 3.17 et 3.18 exposent les résultats après lissage pour $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A')$. Pour les 2 surfaces, cela a tendance à produire des estimateurs plus faibles. Souhaitant éviter au maximum une sur-estimation de la pénalisation qui conduit, comme vu précédemment, à la destruction de la structure du signal à estimer, cette modélisation assure une fois encore d'une estimation, qui si biaisée, le soit le moins possible.

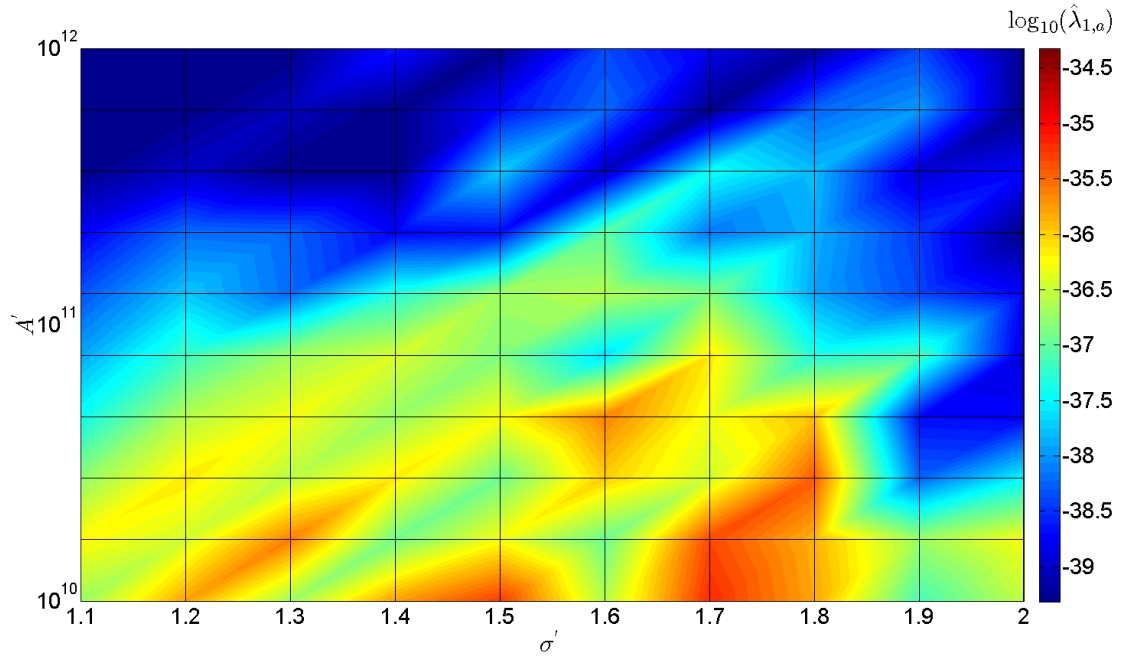


Figure 3.15: Surface de réponse initiale pour $\hat{\lambda}_{1,a}(\sigma', A')$.

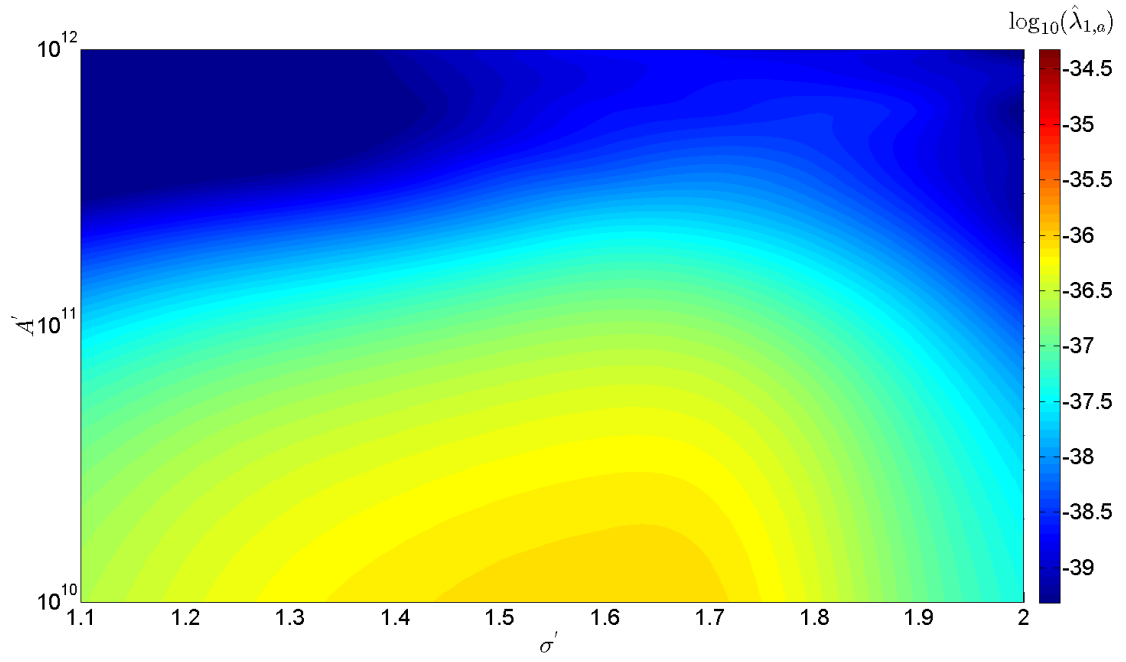


Figure 3.16: Surface de réponse après lissage par la fonction *gridfit* pour $\hat{\lambda}_{1,a}(\sigma', A')$.

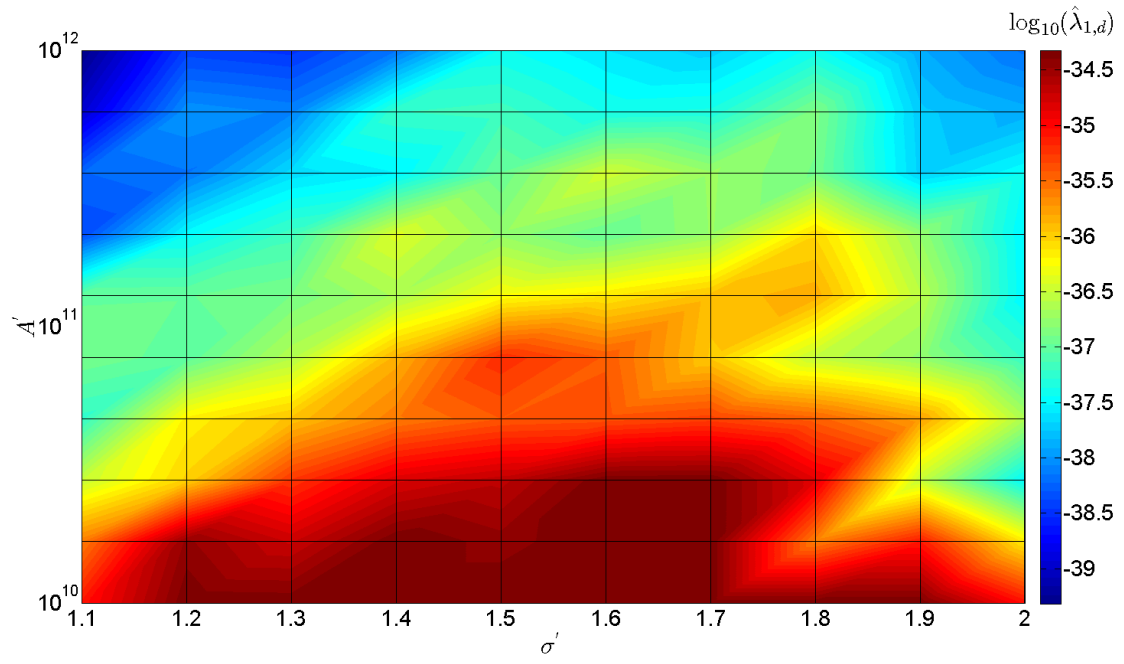


Figure 3.17: Surface de réponse initiale pour $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A')$.

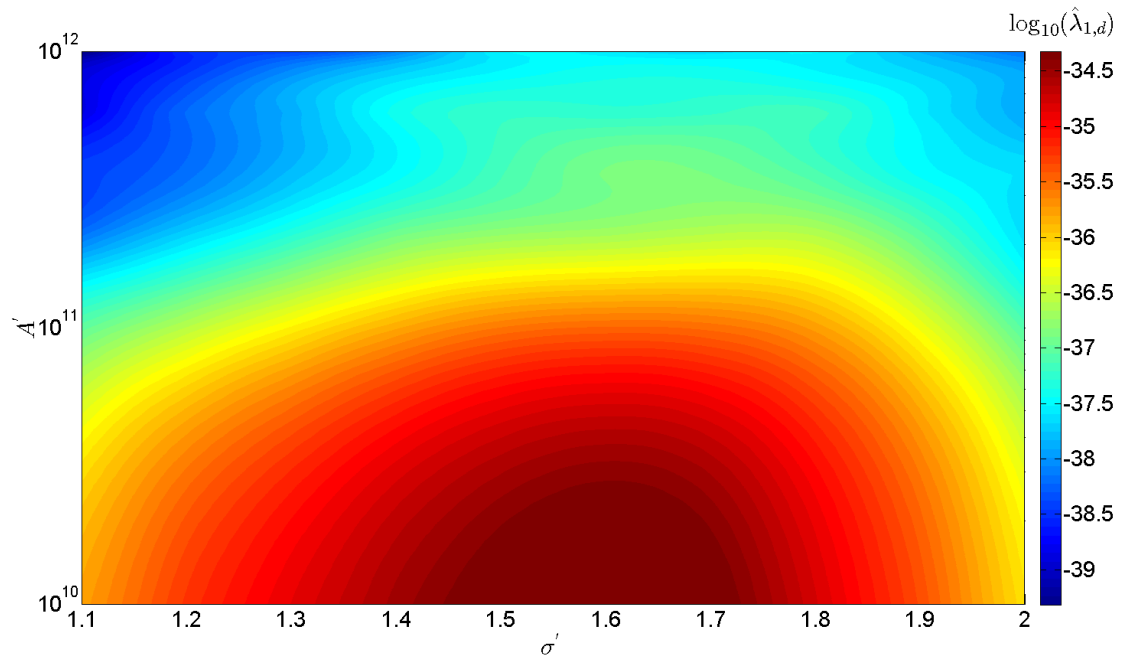


Figure 3.18: Surface de réponse après lissage par la fonction *gridfit* pour $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A')$.

La surface de réponse étant définie, il est nécessaire d'expliciter comment estimer les paramètres A' et σ' à partir d'un jeu d'observations. De plus, une question intrinsèque à la définition du plan d'expériences reste en suspens. En effet, la surface de réponse est générée à partir d'une seule distribution lognormale, autrement dit une seule bosse. Comment procéder lorsque la solution à estimer présente plusieurs bosses ? Doit-on estimer les paramètres d'une bosse plutôt qu'une autre ? La section suivante apporte des réponses sur ces points clés.

Estimation des paramètres de la loi lognormale à partir d'un jeu d'observations

Soient f une distribution analytique simulée et $(y^{[r]})_{r=1,\dots,N_r}$ le jeu d'observations associées ¹ de la section 3.3.2 (cf figure 3.6 et 3.7). Partant de ces données, le calcul des paramètres de régularisation requiert l'estimation des paramètres A' et σ' . Une estimation par moindres-carrés de la solution f est effectuée à partir du jeu d'observations, seulement cette fois, seule la moyenne sur l'ensemble des reconstructions $(\hat{f}_{ms}^{[r]})_{r=1,\dots,N_r}$, notée \hat{f}_{ms} , est conservée pour l'estimation des 2 paramètres. Garder uniquement la moyenne permet de se libérer du bruit haute fréquence et d'obtenir ainsi une bonne première estimation de f . Dans le cas de la distribution f étudiée, 2 bosses existent, alors à partir de quelle bosse doit-on estimer les paramètres de la distribution lognormale ? Souhaitant éviter de biaiser l'estimation finale en favorisant trop fortement l'*a priori* au dépend de la fidélité aux données, le choix naturel réalisé est d'estimer les paramètres de la bosse qui conduisent à des pondérations plus faibles. L'utilisateur précise simplement le nombre de bosses I' visibles sur la reconstruction moyenne \hat{f}_{ms} et les diamètres $(\mu'_j)_{j=1,\dots,I'}$ auxquels ces bosses interviennent. Un fit lognormal est ensuite effectué afin d'estimer le triplet pour chacune des bosses, noté $(\hat{A}', \hat{\sigma}', \hat{\mu}')_{j=1,\dots,I'}$ comme suit :

$$\arg \min_{(A', \sigma', \mu')_{j=1,\dots,I'}} \left[\left\| \sum_{j=1}^{I'} A'_j \exp \left(-\frac{\log^2 \left(\frac{x}{\mu'_j} \right)}{2 \log^2 \sigma'_j} \right) - \hat{f}_{ms} \right\|_2^2 \right], \quad (3.43)$$

et le paramètre estimé utile pour l'estimation de $\hat{\lambda}_{1,d}$ est tel que :

$$\hat{\lambda}_{1,d} = \min_j \left[\hat{\lambda}_{1,d} \left((\hat{\sigma}', \hat{A}')_{j=1,\dots,I'} \right) \right]. \quad (3.44)$$

Sachant que $\hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A') > \hat{\lambda}_{1,d}(\sigma', A')$ pour tout couple (σ', A') , la bosse choisie pour le premier paramètre est conservée pour l'estimation du second. La figure 3.19 illustre le choix de la bosse de \hat{f}_{ms} lorsqu'au préalable le pic a été détecté (colorié en bleu sur la figure) par l'algorithme mis au point en section 3.3.2. La figure 3.20 résume par un schéma bloc simplifié l'heuristique pour une ou plusieurs observations disponibles en entrée. La prochaine étape est désormais la comparaison de notre approche avec la régularisation classique avec *a priori* homogène de douceur.

¹En présence d'une seule observation, un ensemble d'observations simulées selon le modèle de bruit qui sera défini dans le chapitre 4 en section 4.2.4 seront générées, la méthode présentée s'appliquant ainsi de façon similaire pour chaque cas.

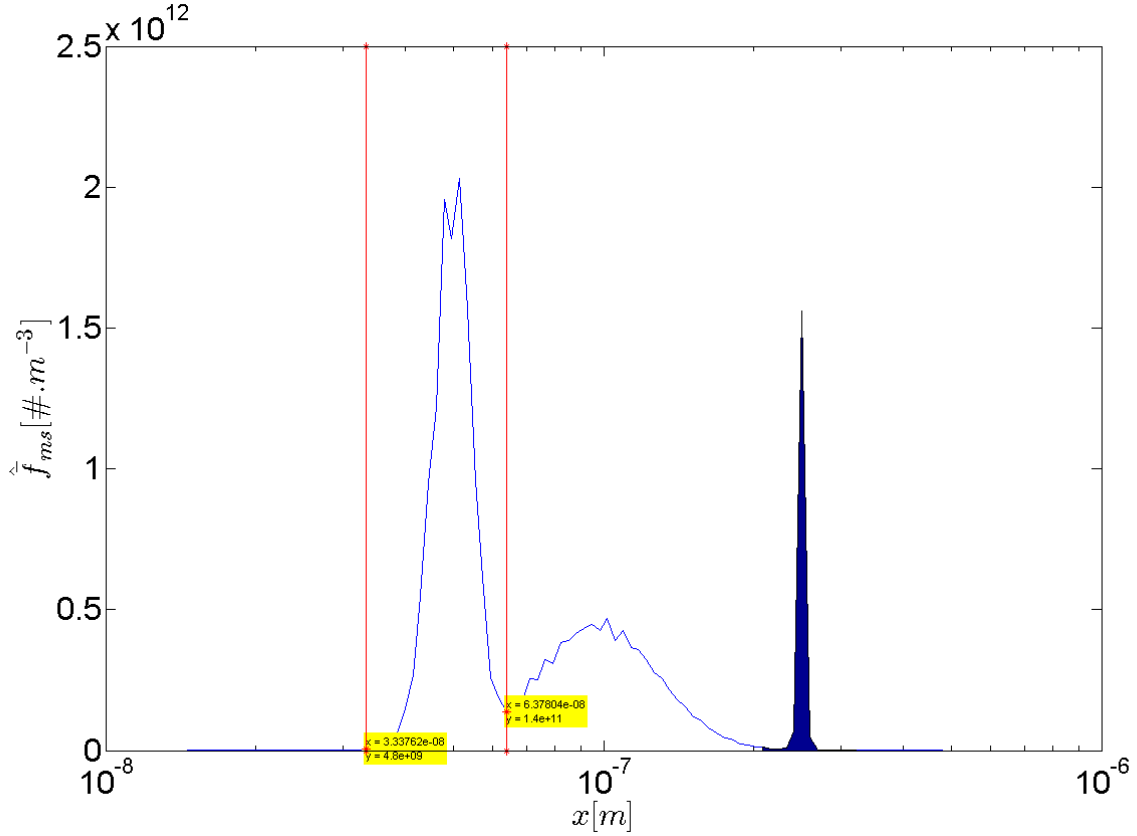


Figure 3.19: Détermination des paramètres A' et σ' de la bosse conduisant aux pondérations les plus faibles à partir de l'estimation moyenne par moindres-carrés \hat{f}_{ms} .

3.3.4 Comparaison numérique des estimateurs par régularisation classique et par la nouvelle procédure développée

Tout comme pour la comparaison des familles d'ondelettes en section 3.3.2, une famille de distributions est simulée (cf figure 3.21) pour une comparaison numérique. Concernant la procédure de régularisation classique, le paramètre de régularisation est calibré pour chaque distribution comme minimisant le critère MSE défini par l'équation (3.39).

Pour la nouvelle méthode, toutes les étapes décrites des sections 3.3.2 à 3.3.3 sont mises en œuvre pour les estimations de $\lambda_{1,a}$ et $\lambda_{1,d}$. MSE est enfin calculée pour chacune des N_r observations et pour chaque distribution simulée, conduisant ainsi à l'obtention de $N_q \times N_r$ valeurs de MSE ($N_r = 100$, $N_q = 100$, soit 10000 valeurs). Les valeurs calculées pour chacune des 2 méthodes sont présentées en figure 3.22 par l'intermédiaire de deux histogrammes.

Les résultats montrent le gain de l'utilisation de la nouvelle procédure sur des distributions mélangeant des profils de différentes natures pour lesquels la pénalisation doit s'adapter. Le MSE est à la fois plus faible en moyenne et en dispersion ce qui assure respectivement une estimation plus fiable et plus robuste. En présence d'un seul pic, la nouvelle procédure offre donc un vrai apport par comparaison avec la technique commune de régularisation. Le même exercice est effectué cette fois avec des distributions présentant 2 pics et une bosse afin de conforter la méthode et son applicabilité à ce type de distributions.

La figure 3.23 montre les distributions simulées avec 2 pics et la figure 3.24 l'histogramme des valeurs calculées pour le critère MSE dans ce deuxième cas. Cette fois encore la méthode est plus fiable et plus robuste même si la différence est moins importante que dans le 1^{er} cas. Le MSE pour ce jeu de distributions est plus grand que dans le 1^{er} cas et ceci uniquement pour la méthode développée alors que la méthode classique présente des résultats similaires. Cette différence est principalement liée à la robustesse de l'algorithme de détection des pics ainsi qu'au choix de la constante κ dans l'expression

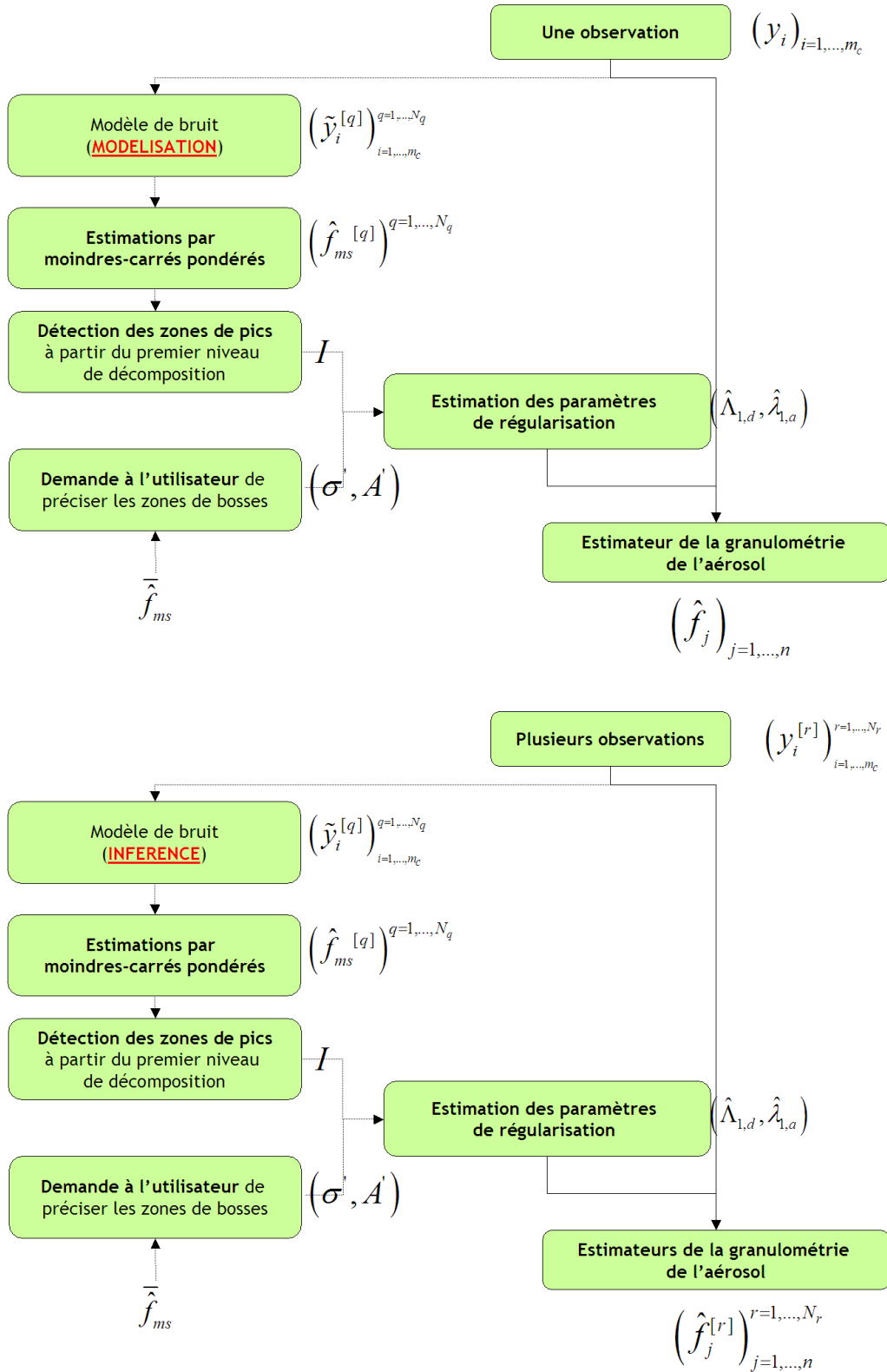


Figure 3.20: Schémas récapitulatifs de l'heuristique développée respectivement pour une seule observation (schéma du haut) et pour plusieurs observations (schéma du bas) en entrée du système.

du vecteur des poids estimés $\hat{\Lambda}_{1,d}$. En effet, une valeur trop faible de cette constante induira une sous-régularisation du pic qui aura été au préalable détecté. En augmentant le nombre de pics, on augmente par la même occasion la partie du signal sous-régularisée ce qui engendre une augmentation du MSE. Néanmoins, les résultats sur 2 pics confirment la validité de la méthode pour le traitement

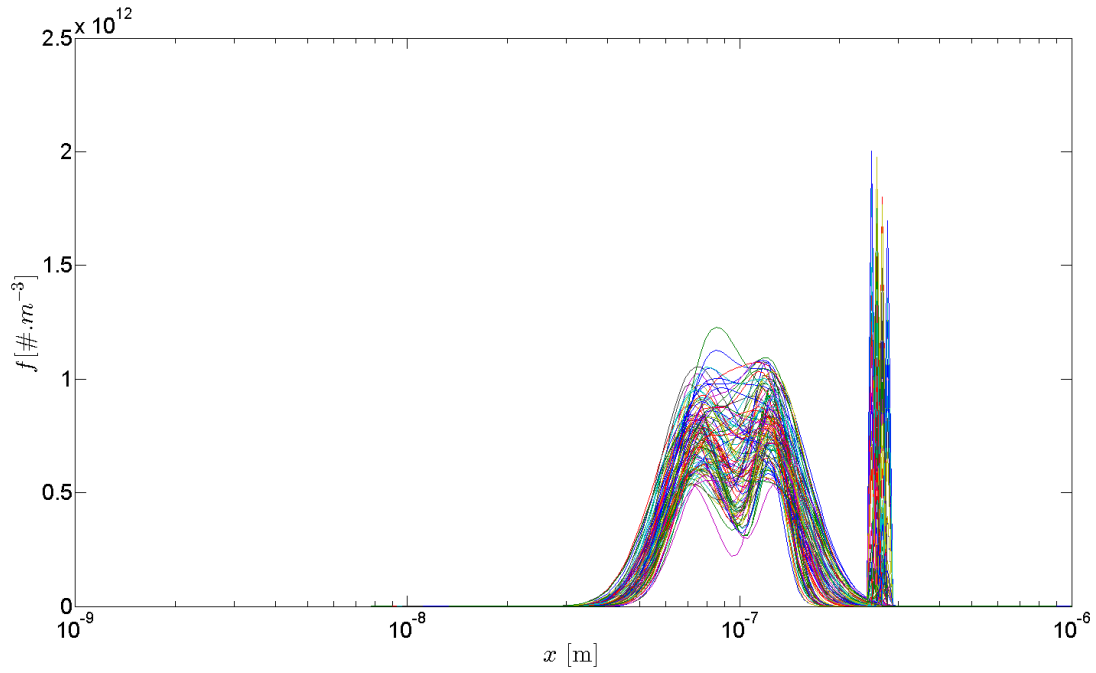


Figure 3.21: Ensemble de distributions simulées avec 1 pic pour la comparaison entre la procédure de régularisation avec *a priori* homogène de douceur et la nouvelle procédure d'inversion.

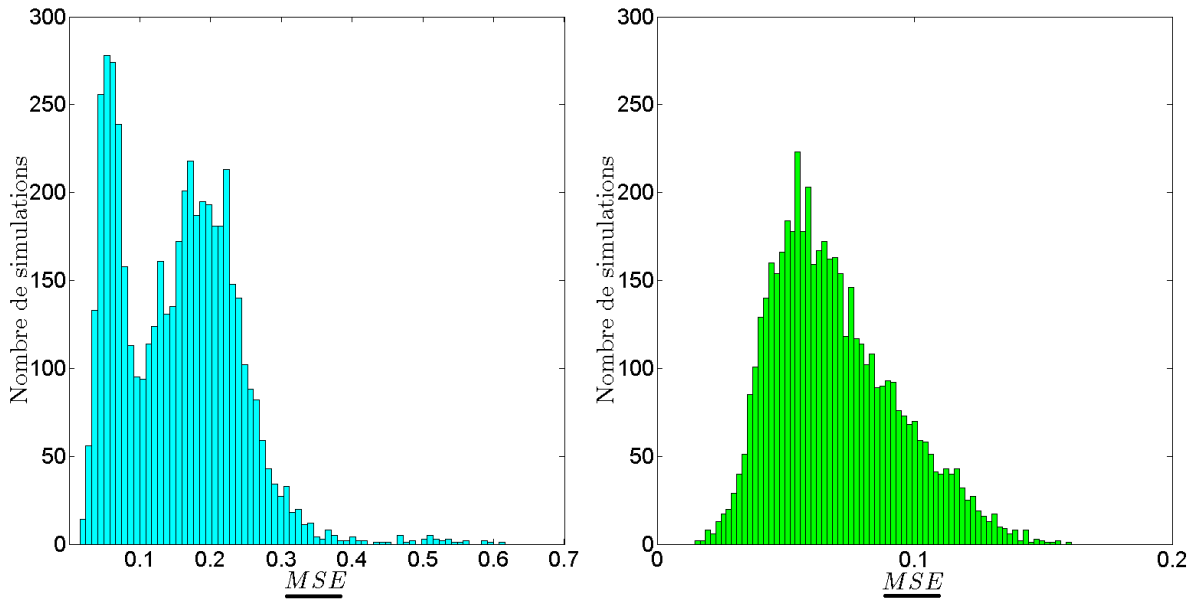


Figure 3.22: Histogrammes des valeurs prises par le critère \underline{MSE} : régularisation avec *a priori* homogène (figure de gauche) et nouvelle procédure (figure de droite) pour $N_q = 100$ distributions simulées et $N_r = 100$ observations générées pour chaque distribution.

de distributions à profils multiples.

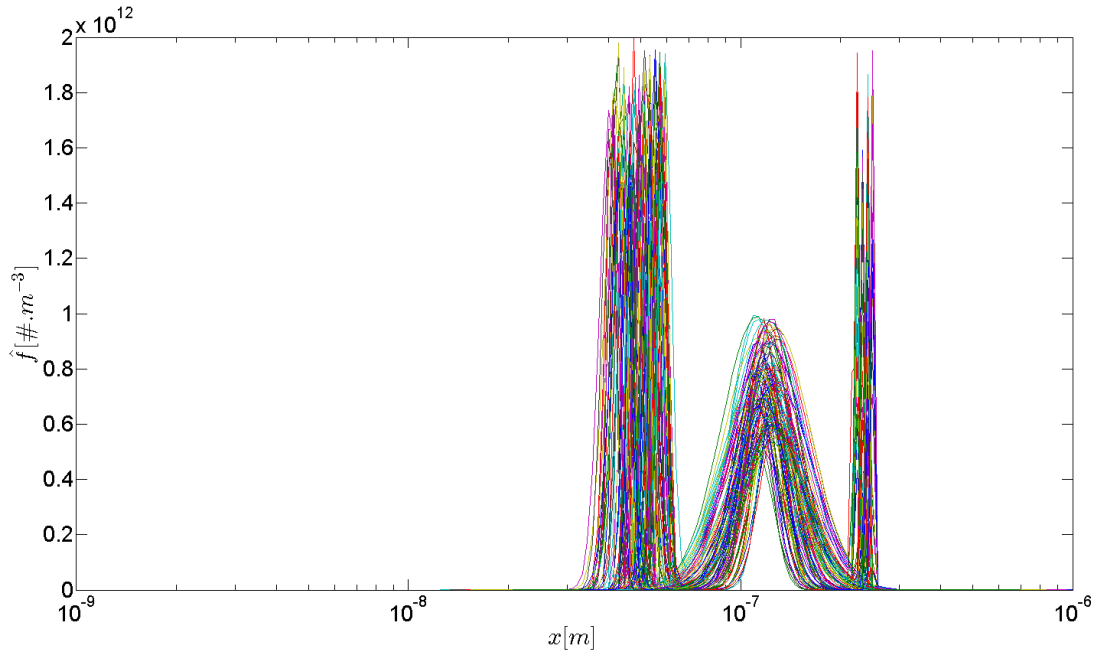


Figure 3.23: Ensemble de distributions simulées avec 2 pics pour la comparaison entre la procédure de régularisation avec *a priori* homogène de douceur et la nouvelle procédure d'inversion.

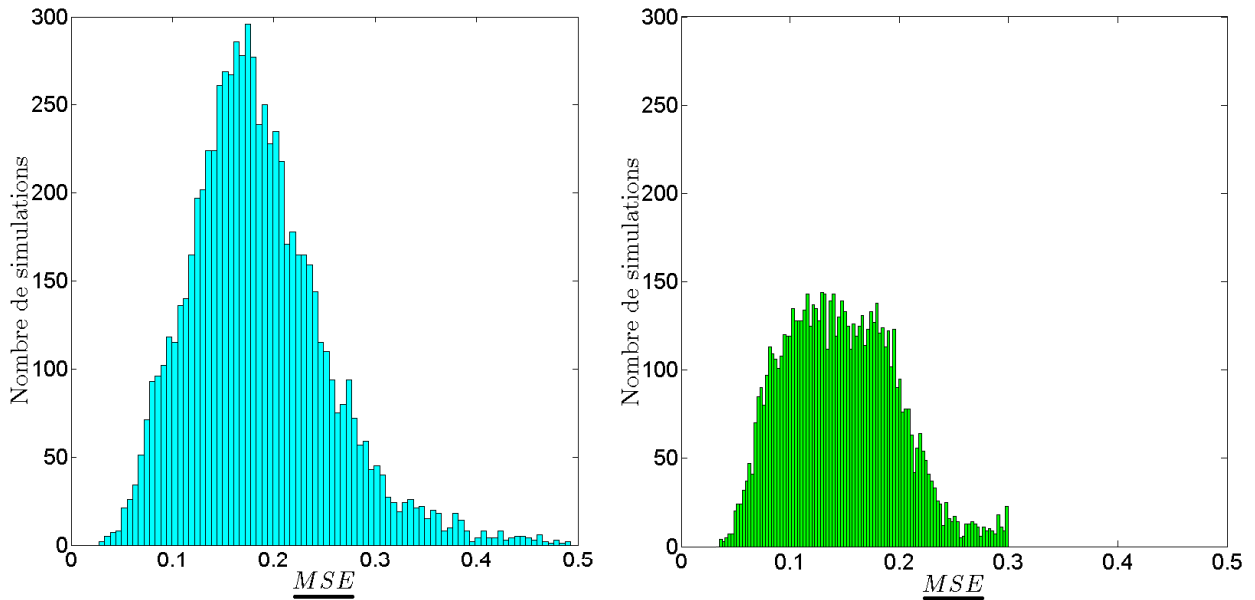


Figure 3.24: Histogrammes des valeurs prises par le critère \underline{MSE} : régularisation avec *a priori* homogène (figure de gauche) et nouvelle procédure (figure de droite) pour $N_q = 100$ distributions simulées et $N_r = 100$ observations générées pour chacune des distributions définies en figure 3.21.

Chapitre 4

Évaluation des incertitudes associées à l'estimation de la granulométrie en nombre d'un aérosol par SMPS

La caractérisation des incertitudes associées à un résultat de mesure, résultat qui peut être obtenu de façon direct ou après une inversion de données (donc indirectement) comme c'est le cas pour la granulométrie en nombre étudiée ici, fait l'objet d'une attention toute particulière depuis plusieurs années. Cet attrait est principalement dû à l'explosion de la simulation numérique comme méthode se substituant aux mesures réelles souvent coûteuses en temps et en ressources. Le développement des codes numériques pour représenter des phénomènes physiques complexes pose alors naturellement la question d'un niveau de confiance à accorder à la sortie dudit code. En effet, différentes sources d'incertitude apparaissent dans la chaîne de modélisation engageant des experts dans diverses spécialités. Le physicien procède à des simplifications pour l'établissement du modèle physique qui lie entrées et sorties du système de mesure (incertitudes de modèle). Le mathématicien quant-à lui définit des méthodes numériques pour approcher la solution à évaluer (incertitudes numériques) et un algorithme de résolution est implémenté dans un langage de programmation donné, achevant ainsi la création du code numérique. Enfin, le statisticien entre en scène pour comprendre comment à la fois les données d'entrée du système (les observations mesurées) présentant une certaine variabilité (incertitudes stochastiques) et les paramètres du code numérique (incertitudes épistémiques) vont modifier la quantité d'intérêt.

Les incertitudes citées jusqu'alors sont liées au problème direct qui modélise la génération des observations. Cependant, dans notre cas d'étude, une inversion de données s'opère ensuite. Si les variations des entrées du système qui engendrent la variabilité sur les observations étaient connues, alors le modèle d'inversion pour estimer la granulométrie f serait calculé avec ces mêmes entrées, or ce n'est pas le cas ici. Les incertitudes intervenant cette fois sont donc liées à la méconnaissance du modèle d'inversion à choisir pour chaque observation (on rappelle que l'expérimentateur dispose d'un jeu d'observations présentant une certaine variabilité à partir duquel une inversion est réalisée pour estimer f).

Comprendre et caractériser chacune des sources est un travail délicat qui nécessite une étroite collaboration inter-disciplinaire. Une question naturelle soulevée est alors : pourquoi l'évaluation de l'incertitude de mesure est-elle si importante ?

- Amélioration du code numérique représentant le phénomène physique (précision de l'estimation),
- Aide à la décision (par exemple l'estimation de la résistance d'une structure, barrages et autres)
- Réduction de l'incertitude de mesure par un meilleur contrôle des paramètres identifiés,
- Compréhension approfondie du système de mesure et des mécanismes intervenant au cours de la mesure,

- Identification des entrées occasionnant une forte variabilité sur la quantité d'intérêt.

Évaluer l'incertitude associée à la sortie d'un code numérique, c'est comprendre comment propager toutes les sources d'incertitude à travers le code numérique et estimer l'impact en terme de variabilité et de biais sur la quantité d'intérêt.

Le guide pour l'expression de l'incertitude de mesure (GUM [JCGM, 1995]) et son supplément [JCGM, 2008] offrent une méthodologie générale pour évaluer l'incertitude associée à un mesurande de nature scalaire ou vectoriel par deux approches : l'approche par approximation de *Taylor* à l'ordre 1 et l'approche par simulation de Monte-Carlo. Si la première approche calcule l'incertitude totale comme la somme des incertitudes individuelles sur chaque paramètre selon les règles de la propagation des variances, la seconde nécessite de quantifier les sources d'incertitude en associant à chaque source (paramètre) une distribution de probabilité (normale, triangulaire, uniforme, etc.) et de propager ces distributions à travers le code numérique pour finalement représenter l'incertitude sur la quantité d'intérêt par un représentant statistique (variance, quantiles à 95 %, etc.).

Toutefois, les limitations du GUM pour l'évaluation de l'incertitude apparaissent rapidement pour les problèmes traités dans l'industrie du fait de la grande dimension des problèmes, de la nature de la quantité d'intérêt (ici une fonction) ou encore dans le cas de problèmes inverses.

L'estimation de la granulométrie en nombre par technique SMPS présente toutes ces difficultés. Les observations sont obtenues par l'intermédiaire d'un modèle physique qui présente un grand nombre de paramètres et différentes fonctions pour traduire les phénomènes de charge des particules, leur sélection et leur détection (loi de charges, fonction de transfert du DMA, efficacité de détection du CNC). De plus, plusieurs théories existent pour la définition des paramètres (par exemple le triplet de *Cunningham* en section 2.1.1) et des fonctions (par exemple pour la modélisation de loi de charges en section 2.2.1) comme vu dans le premier chapitre de cette thèse. L'inversion permet enfin l'estimation du mesurande de nature fonctionnel à partir des observations, mesurande qui n'est pas unique comme nous le verrons par la suite.

Tenant de répondre à ces divers problématiques, ce chapitre s'articule selon les 3 axes suivant :

1. Définition des mesurandes en section 4.1.1, classement des sources d'incertitude en section 4.1.2, mise en évidence des limitations de la propagation classique de l'incertitude face à ce problème d'inversion et enfin proposition d'une nouvelle méthode de propagation en section 4.1.3 et 4.1.4
2. Discrimination des sources les plus influentes en section 4.2.2, modélisation des sources d'incertitude par une caractérisation expérimentale en section 4.2.3 ou par l'intermédiaire des divers théories existantes en section 4.2.5
3. Application de la méthodologie développée sur des signaux réels en section 4.2.8

La section suivante décrit la méthodologie générale envisagée pour répondre au problème d'évaluation de l'incertitude associée à un mesurande ¹ fonctionnel, en présence d'un nombre élevé de sources d'incertitude de natures variées dans le cas d'un problème d'inversion de données.

4.1 Méthodologie générale

Avant toute chose, pour toute mesure, il est nécessaire de statuer sur l'objet à étudier. Ce qui paraît évident dit de cette façon n'est pas si trivial en pratique. Caractériser les aérosols par technique SMPS nécessite de définir un mesurande qui n'est autre que la granulométrie en nombre de l'aérosol f . Il est par conséquent de nature fonctionnel. Ce mesurande est estimé suite à une inversion de données à partir des comptages de particules y en sortie du CNC, il est donc obtenu de façon indirecte. 2 configurations conduisant à la caractérisation de 2 mesurandes sont distinguées en fonction de la stabilité en concentration de particules en entrée du système de mesure.

¹En métrologie, le VIM définit le mesurande comme «la grandeur que l'on veut mesurer»

4.1.1 Définition des mesurandes

1. **l'aérosol est stable** : l'hypothèse de stabilité signifie que l'objet que l'on cherche à caractériser n'évolue pas (ou de façon négligeable) d'une acquisition à l'autre. Une acquisition dure généralement entre 1 min et 3 min et on peut les enchaîner. Ainsi, un jeu d'observations est finalement généré, on parle alors de répliquats de mesure correspondant au nombre d'acquisitions effectuées. C'est le cadre choisi pour les mesures effectuées en laboratoire pour lesquelles les conditions opératoires sont contrôlées. Toutefois, dans ce cas précis, la stabilité est dépendante du processus de génération de l'aérosol. En effet, la génération d'aérosol est souvent réalisée à partir de nanoparticules présentes dans une solution liquide mise en suspension par atomisation, ce qui entraîne une instabilité en concentration. Le mesurande n'est donc pas tout à fait identique d'une mesure à l'autre.

la légère instabilité n'est pas modélisée «à la source» car on dispose de trop peu de connaissances physiques sur la dispersion lors de la génération. En revanche, on dispose de plusieurs observations en sortie du CNC ce qui va nous permettre de modéliser par un modèle comportemental les conséquences de cette dispersion. Du fait du temps réduit nécessaire à la réalisation d'une acquisition, l'expérimentateur peut fournir facilement aux alentours de 40 répliquats de mesure. ces répliquats sont requis pour l'évaluation de l'incertitude. La figure 4.1 présente 40 mesures de

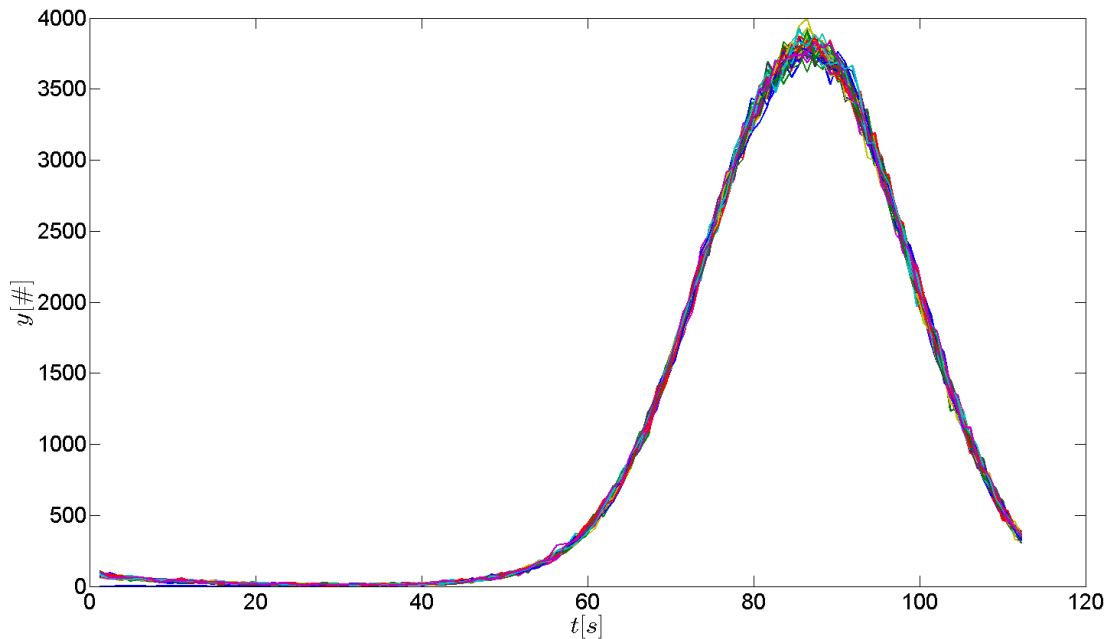


Figure 4.1: Exemple d'aérosol stable : 40 mesures pour un aérosol à base d'huile (Di-Ethyl2-Hexil-Phtalate ou DEHP).

comptage par le CNC 3022 d'un aérosol à base d'huile dont la mise en suspension est assurée par l'atomiseur 3776 de la société TSI.

2. **l'aérosol est instable** : le mesurande évolue rapidement au cours du temps, cette évolution se traduit par le fait que d'une mesure à l'autre l'objet à caractériser a changé. C'est le cas des mesures in situ (sur le périphérique parisien, mesures dans l'atmosphère, etc.). Aucun processus de génération d'aérosol n'est requis car l'aérosol est naturellement présent sur site. Il s'agit alors de caractériser la granulométrie en nombre f de l'aérosol pour un laps de temps court, autrement dit, le temps d'une seule acquisition. La réalisation de répliquats de mesure s'avère alors impossible avec un seul appareil. L'information nécessaire à la quantification de l'incertitude associée au mesurande ne sera plus extraite des observations y mais proviendra d'une modélisation pointue du processus de mesure. La figure 4.2 présente quelques profils de comptage obtenus sur un

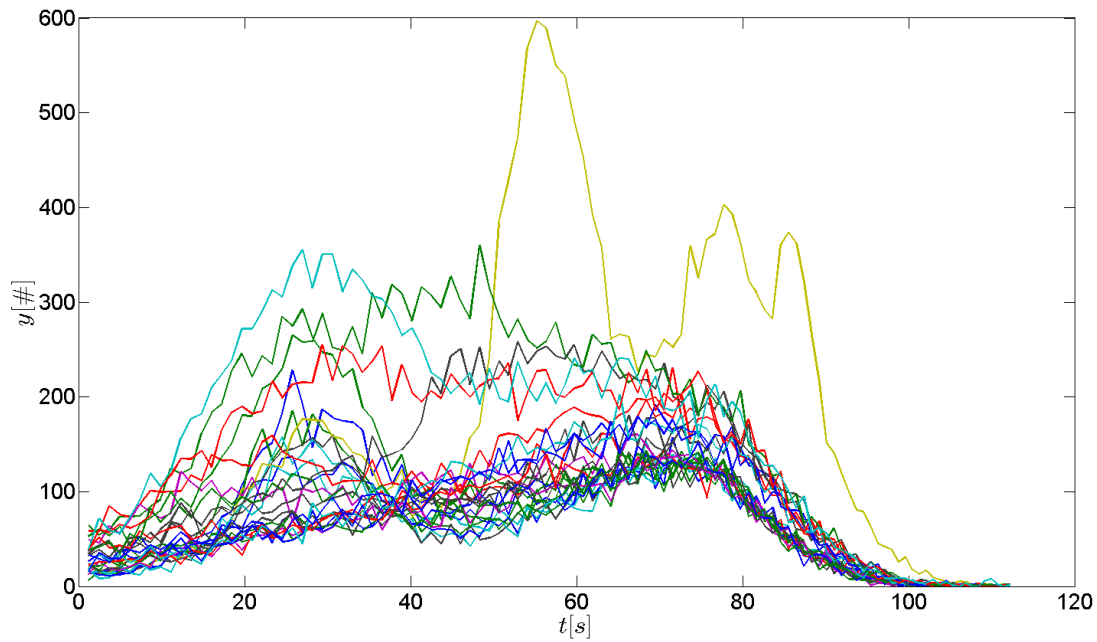


Figure 4.2: Exemple d'aérosol instable : mesures d'aérosols urbains avec prélèvement au 2^{ème} étage du site du LNE Paris en milieu d'après-midi.

aérosol urbain instable. Les prélèvements ont été effectués en plein après-midi au 2^{ème} étage du bâtiment du LNE sur le site de Paris dans le XV^{ème} arrondissement. On comprend facilement à la vue de cet exemple la nécessité de dissocier les traitements à apporter pour les aérosols stables et instables.

La figure 4.3 illustre graphiquement les propos tenus dans les 2 points ci-dessus justifiant la création de 2 scénarios conduisant à l'évaluation de 2 mesurandes.

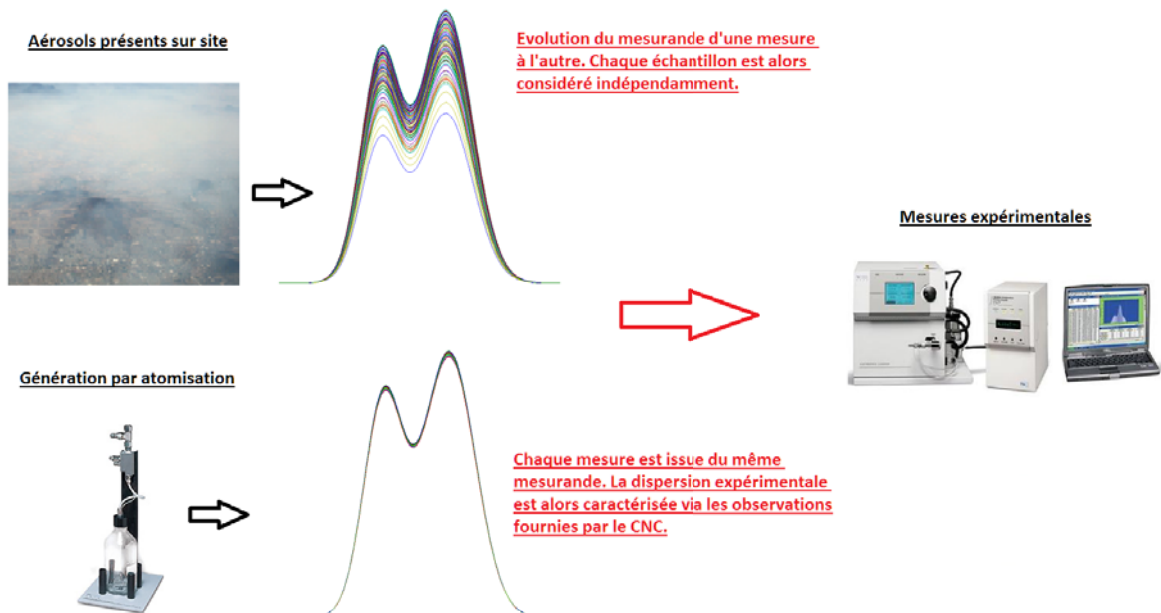


Figure 4.3: Schéma illustrant la nécessité de distinguer 2 mesurandes.

4.1.2 Regroupement des sources d'incertitude

Face à un problème de grande dimension comme celui étudié, l'évaluation de l'incertitude requiert une segmentation ou regroupement des divers sources d'incertitude. Nous avons considéré trois ensembles de sources que sont :

- **La dispersion expérimentale :**

Lors d'une mesure, il est évident que de nombreux paramètres (ou fonctions) varient et génèrent ainsi une dispersion dite expérimentale sur les signaux mesurés. Cette dispersion expérimentale est constituée d'un premier ensemble de paramètres dits environnementaux que sont entre autres la température, la pression, l'humidité relative, etc. On parle alors de variabilité paramétrique partielle car la plage complète de variation des sources environnementales incertaines est supérieure à la variabilité paramétrique observée sur un nombre de réplicats de mesure limité dont on rappelle qu'ils sont obtenus avec le même appareil de façon consécutive (donc dans un intervalle de temps réduit).

La seconde source d'incertitude intégrant la dispersion expérimentale provient du processus de génération de l'aérosol. En effet, l'hypothèse de stabilité préalablement établie dans le cas du premier mesurande suggère de considérer une granulométrie moyenne sur l'ensemble des réplicats de mesure à disposition. Cela se justifie du fait que, sous conditions expérimentales contrôlées, comme c'est le cas en laboratoire, la variation du mesurande induite par le processus de génération est suffisamment faible pour pouvoir être modélisée comme une composante de la dispersion expérimentale comme nous le verrons en section 4.2.4.

- **Le comptage des particules par le CNC :**

La détection des particules est sujette à incertitudes, incertitudes qui augmentent en fonction de la concentration en particules dans la chambre de détection. Le processus de comptage évolue à mesure que la concentration augmente. Le comptage est réalisé particule par particule (Single Particle Count) pour des concentrations faibles en entrée ($\leq 10^3$ particules par cm^3). Une estimation du nombre de particules «manquées» par le détecteur lorsque celui-ci est paralysé par le passage de plusieurs particules est effectuée (Live Time Count) pour des concentrations intermédiaires (entre 10^3 et 10^4 particules par cm^3). Enfin lorsque la concentration dépasse 10^4 particules par cm^3 , les particules sont dénombrées dans la chambre de détection en calculant l'intensité lumineuse que celles-ci diffusent suite au passage de photo-lasers. Cette source d'incertitude est couramment appelée le bruit de mesure. La modélisation de cette source interviendra pour l'évaluation de l'incertitude associée au second mesurande et fera l'objet de la section 4.2.4

- **La méconnaissance paramétrique et fonctionnelle :**

C'est le groupe des paramètres (et des fonctions) dits méconnus, fixes ou variables au cours de la mesure. Le terme méconnu va prendre ici plusieurs interprétations. Certains paramètres sont fixes ou variables au cours d'un essai. Un essai représente l'ensemble des acquisitions dans le cas du premier mesurande ou bien une seule acquisition pour le second.

Concernant les paramètres fixes, on parle de méconnaissance pure comme c'est le cas pour les paramètres géométriques du DMA. Ces paramètres définissent le champ électrique, le champ d'écoulement d'air et la migration des particules soumises au champ électrique. On sait que ces paramètres sont fixes au cours de la mesure mais ces paramètres n'ont pas été mesurés lors de la thèse. Les valeurs de L , r_1 et r_2 sont donc celles fournies par le constructeur du SMPS sans information quant-aux tolérances associées à leurs mesures si ce n'est celles fournies par la norme ISO 15900 [Standard, 2009] ou [Kinney et al., 1991].

S'agissant des paramètres variables, on modélise séparément les variations autour de la valeur moyenne de l'essai (dispersion expérimentale) de la méconnaissance de la valeur moyenne de l'essai (liée à l'appareil utilisé, aux paramètres environnementaux que sont la température ou

la pression notamment, etc.). C'est le cas pour les mobilités ioniques par exemple. La distribution des mobilités ioniques n'est pas mesurée, on sait donc que Z_I^+ et Z_I^- varient mais pour autant nous sommes incapables de statuer de leurs dispersions et valeurs moyennes respectives. Les informations relatives à leurs évolutions lors de la mesure sont dans ce cas fournies par différents auteurs ayant publié des valeurs mesurées (dans d'autres conditions expérimentales ou avec d'autres appareils). Les valeurs faisant consensus (valeurs données par [Reischl et al., 1996]) sont choisies comme valeurs moyennes pour l'essai. La dispersion autour de cette valeur moyenne est quant-à elle modélisée via l'information disponible (valeurs mesurées par d'autres auteurs). Concernant la méconnaissance fonctionnelle, elle provient de la définition de multiple théories pour la modélisation d'un phénomène physique. C'est la cas pour la fonction de transfert du DMA Ω avec ou sans prise en compte de la diffusion ou encore pour la loi de charges ϕ comme nous le verrons respectivement en section 4.2.5 et 4.2.5

4.1.3 Limitations de la méthodologie classique de propagation

Une fois les divers sources d'incertitude regroupées, l'étape suivante est la mise en place d'une stratégie pour propager ces sources à travers l'algorithme d'inversion. Usuellement, l'incertitude porte sur les mesures et une inversion à modèle fixé est effectuée. Soient $\theta \in R^p$ l'ensemble des paramètres du modèle physique noté \mathcal{M}_p , $\theta_0 \in R^p$ l'ensemble des paramètres du modèle fixés à leurs valeurs nominales, $\epsilon \in R^{m_c}$ le bruit de mesure, $\Delta\theta_d \in R^p$ et $\Delta\theta_m \in R^p$ respectivement la dispersion expérimentale et la méconnaissance, alors les observations y sont modélisées, connaissant f , comme suit :

$$y = \mathcal{M}_p(\theta, f) + \epsilon, \quad \theta = \theta_0 + \Delta\theta_d + \Delta\theta_m. \quad (4.1)$$

L'inversion consiste alors à estimer f connaissant y .³ Négligeant la contrainte de positivité sur f , une expression analytique de l'estimateur \hat{f} peut être calculée. En effet, si on simplifie l'écriture en notant $\Delta\theta = \Delta\theta_d + \Delta\theta_m$ et $K_\theta \in R^{m_c \times n}$ la matrice représentant la discrétisation bi-dimensionnelle (temps, diamètres) du modèle \mathcal{M}_p , alors y s'exprime comme :

$$y = K_{[\theta_0 + \Delta\theta]} f + \epsilon. \quad (4.2)$$

Un développement de *Taylor* à l'ordre 1 conduit à approcher $K_{[\theta_0 + \Delta\theta]}$ par $K_{\theta_0} + \nabla K_{\theta_0} \otimes_3 \Delta\theta$ (le produit tensoriel \otimes_i correspond à la contraction du tenseur d'ordre 3 sur la $i^{\text{ème}}$ dimension en tenseur d'ordre 2) de sorte que :

$$y = (K_{\theta_0} + \nabla K_{\theta_0} \otimes_3 \Delta\theta) f + \epsilon, \quad (4.3)$$

$$= K_{\theta_0} f + (\nabla K_{\theta_0} \otimes_2 f) \Delta\theta + \epsilon. \quad (4.4)$$

Minimiser l'erreur quadratique moyenne pour un modèle fixe (K_{θ_0}) sous l'*a priori* régularisant noté R conduit à l'expression de l'estimation \hat{f} :

$$\hat{f} = (K_{\theta_0}^t K_{\theta_0} + \lambda R)^{-1} K_{\theta_0}^t y, \quad (4.5)$$

$$= (K_{\theta_0}^t K_{\theta_0} + \lambda R)^{-1} K_{\theta_0}^t (K_{\theta_0} f + (\nabla K_{\theta_0} \otimes_2 f) \Delta\theta + \epsilon). \quad (4.6)$$

Sous les hypothèses que $E(\Delta\theta) = 0$ et $E(\epsilon) = 0$, on obtient l'espérance de l'estimateur :

$$E(\hat{f}) = (K_{\theta_0}^t K_{\theta_0} + \lambda R)^{-1} K_{\theta_0}^t K_{\theta_0} f. \quad (4.7)$$

La variance de l'estimateur par rapport aux variations $\Delta\theta$, notée $V_{\Delta\theta}(\hat{f})$ s'exprime ensuite comme :

$$\begin{aligned} V_{\Delta\theta}(\hat{f}) &= E(\hat{f} \hat{f}^t), \\ &= H K_{\theta_0}^t (\nabla K_{\theta_0} \otimes_2 f) \Gamma_\theta (\nabla K_{\theta_0} \otimes_2 f)^t K_{\theta_0} H^t, \end{aligned} \quad (4.8)$$

²On ne considère pas les fonctions dans l'explication qui suit pour simplifier les écritures mathématiques.

³Le cas où une seule acquisition est disponible est présentée ici (cas du second mesurande), ainsi $K_\theta \in R^{m_c \times n}$ alors que $K_\theta \in R^{N_r \times (m_c \times n)}$ en présence d'un jeu d'observations $\left(y_i^{[r]}\right)_{i=1, \dots, m_c}^{r=1, \dots, N_r}$ pour le premier mesurande.

où $H = (K_{\theta_0}^t K_{\theta_0} + \lambda R)^{-1}$ et Γ_θ est la matrice de variance/covariance des θ .

Moyenne et variance de l'estimateur dépendent de la valeur du mesurande f que l'on souhaite estimer. L'objectif ici est de caractériser le biais et la variance de l'estimateur \hat{f} . Caractériser la variance de l'estimateur nécessite de connaître f comme vu dans l'équation (4.8). De plus, caractériser le biais requiert des mesures réalisées pour un aérosol de référence qui n'existe pas à l'heure actuelle. Conscient de ces difficultés, nous proposons une alternative détaillée dans la prochaine section.

4.1.4 Alternative pour la propagation des sources

Nous avons vu dans la section précédente que faire porter toute l'incertitude sur les observations y nécessitait une caractérisation du biais de mesure. Dans l'incapacité d'évaluer précisément ce biais, la méthodologie mise en œuvre associe la dispersion expérimentale et le bruit de mesure aux observations alors que la méconnaissance est modélisée par la création d'un modèle d'inversion, non plus fixe comme précédemment, mais aléatoire. Ainsi, en conservant les notations définies dans la section précédente, les observations sont cette fois modélisées comme suit :

$$y = \mathcal{M}_p(\theta, f) + \epsilon, \quad \theta = \theta_0 + \Delta\theta_d + \Delta\tilde{\theta}_m, \quad (4.9)$$

où $\Delta\tilde{\theta}_m$ traduit le fait que pour une acquisition disponible (cas traité ici), les éléments du groupe de la méconnaissance sont fixés à une valeur donnée.

L'inversion par régularisation sera cette fois effectuée par l'intermédiaire du modèle aléatoire K_θ , où $\theta = \theta_0 + \Delta\theta_m$, qui remplacera la matrice K_{θ_0} de la propagation classique.

Transférer la méconnaissance $\Delta\theta_m$ au niveau du modèle d'inversion va permettre de caractériser le biais dû à la mauvaise estimation de certains paramètres et autres fonctions ou encore de traduire la présence de plusieurs théories pour définir le même processus physique. Toutefois, pour valider cette approche, il est nécessaire de vérifier que la variance de l'estimateur obtenue par cette alternative est du même ordre que la variance de l'estimateur classiquement obtenue.

Une validation numérique sera présentée en section 4.2.7 une fois la modélisation complète des sources effectuée. Tout d'abord, il s'agit de définir et de classer les sources d'incertitude dans chaque groupe ($\Delta\theta_m, \Delta\theta_d$) pour ensuite proposer une modélisation de l'incertitude associée à chaque groupe.

4.2 Application au cas de l'estimation de la granulométrie en nombre d'un aérosol par SMPS

Ayant défini les groupements de sources d'incertitude relatives au problème ainsi que la méthode pour la propagation des sources, il est à présent temps de définir chacun des éléments des groupes établis. Le paragraphe suivant liste les différentes sources intervenant dans la mesure d'un aérosol par technique SMPS.

4.2.1 Liste des sources d'incertitude

Tableau 4.1: Liste des sources d'incertitude identifiées lors de la mesure d'un aérosol par technique SMPS et classement des sources dans les groupes modélisant respectivement la dispersion expérimentale et/ou la méconnaissance.

Type	Variable	Unité	$\Delta\theta_d$	$\Delta\theta_m$
Sources paramétriques				
Tension		[V]		
Tension minimale	U_{min}	-	×	×
Tension maximale	U_{max}	-	×	×
Temps du système		[s]		
Temps de scanning	t_s	-	×	
Temps de transport	t_d	-	×	×
Temps de résidence	t_f	-	×	×
Géométrie du DMA		[m]		
Rayon interne des électrodes	r_1	-		×
Rayon externe des électrodes	r_2	-		×
Longueur du DMA	L	-		×
Débits		[lpm]		
Débit d'air filtré	Q_{sh}	-	×	
Débit d'aérosol	Q_a	-	×	
Débit de l'échantillon	Q_{cpc}	-	×	
Débit en excès	Q_{ex}	-	×	
Température		[K]		
Température absolue du gaz porteur	T	-	×	
Pression		[kPa]		
Pression absolue du gaz porteur	P	-	×	
Facteurs de <i>Cunningham</i>		[]		
Facteur 1	A	-		×
Facteur 2	B	-		×
Facteur 3	C	-		×
Masse ionique		[amu]		
Masse des ions positifs	m_I^+	-	×	×
Masse des ions négatifs	m_I^-	-	×	×
Mobilité ionique		[cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹]		
Mobilité des ions positifs	Z_I^+	-	×	×
Mobilité des ions négatifs	Z_I^-	-	×	×
Autres				
Humidité relative	-	-	×	×
Sources fonctionnelles				
Modélisation physique				
Loi de charges	ϕ	-	×	×
Fonction de transfert DMA	Ω	-	×	×
Efficacité de détection du CNC	W	-		×
Génération de l'aérosol				
Impuretés dans la solution	-	-	×	×
Instabilité du processus de génération	-	×	×	
Autres				
Effets de charges	-	-	×	×

Le tableau 4.1 résume l'ensemble des sources d'incertitude et, pour celles considérées, donnent leurs appartenances respectives au groupe modélisant la dispersion expérimentale $\Delta\theta_d$ et/ou au groupe modélisant la méconnaissance $\Delta\theta_m$.

Les paramètres environnementaux (débits, pression, température) sont mesurés pour chaque essai, et pour le débit, celui-ci est même mesuré par un débitmètre interne au DMA pour chaque acquisition (voir la caractérisation expérimentale de cette source en section 4.2.3). Concernant la température et la pression, la durée d'un essai étant suffisamment courte, ces paramètres seront intégrés au modèle de

dispersion expérimentale. ces paramètres sont donc classés dans le groupe $\Delta\theta_d$.

Les variations induites par l'instabilité de la génération de l'aérosol apparaissent au sein d'un même essai et on ne sait pas modéliser *a priori* ces variations. Les réplicats de mesure au sein de l'essai sont utilisés pour intégrer cette source au sein de la dispersion expérimentale.

Les paramètres méconnus quant-à eux sont ceux qui ne sont pas mesurés lors d'une expérience : les paramètres géométriques du DMA, les facteurs de correction de *Cunningham*, etc. La fonction modélisant l'efficacité de comptage du CNC en fonction du diamètre des particules intègre ce groupe car l'incertitude associée à chaque diamètre est méconnue.

Certains paramètres et fonctions appartiennent aux deux groupes car on sait qu'ils sont variables mais pour autant ils ne sont pas mesurés à chaque expérience. C'est le cas notamment pour les mobilités et masses ioniques, les tensions minimales et maximales utilisées pour la rampe de tension appliquée à l'électrode centrale du DMA ou encore les temps de transport t_d et de résidence t_f des particules.

Certaines sources méconnues et variables comme l'humidité relative, les effets de charge ou encore les impuretés dans la solution dans le cas de l'atomisation d'une suspension liquide ne peuvent être modéliser *a priori*, par conséquent elles intègrent tout comme la génération de l'aérosol, le groupe de la dispersion expérimentale. Elles seront néanmoins prises en compte à partir des réplicats au sein de l'essai. S'agissant de la méconnaissance de ces sources, celle-ci est supposée négligeable du fait du manque de moyen pour la quantifier (pas de modèles existants à notre connaissance pour les considérer et pas de mesures effectuées au cours de la thèse).

Il est aussi à noter que les sources fonctionnelles listées dépendent de certains paramètres incertains définis comme sources paramétriques comme c'est le cas pour la loi de charges qui dépend des mobilités et masses ioniques ou encore pour la fonction de transfert du DMA. La modélisation de l'incertitude sur ces fonctions sera réalisée respectivement en section 4.2.5 et 4.2.5. En revanche pour l'analyse de sensibilité qui fait l'objet de la section suivante, seuls les sources paramétriques seront considérées.

Les composantes de l'incertitude étant définies, il s'agit maintenant de comprendre quelles sont celles qui sont les plus influentes. Cette volonté de réduire la dimension du problème se retrouve couramment lorsque le nombre d'entrées d'un code numérique est important. La prochaine section traite de la discrimination des sources influentes par analyse de sensibilité.

4.2.2 Analyse de sensibilité

Lorsque l'estimation de la sortie d'un code numérique est trop coûteuse en temps de calcul et que le nombre de paramètres incertains est élevé, les méthodes d'analyse de sensibilité doivent permettre, moyennant un nombre limité d'appels au code numérique, de discriminer les paramètres les plus influents. L'ambition de ce type de démarche est la réduction de la dimension du problème. Par dimension, il faut comprendre nombre de paramètres ayant une influence significative sur la sortie du code numérique. L'influence des paramètres est souvent quantifiée par la variabilité induite sur la sortie étudiée.

Soit un système \mathcal{M}_p dépendant d'un ensemble de paramètres θ , avec $\theta = (\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_k, \dots, \theta_p)$, l'analyse de sensibilité étudie l'influence des paramètres de l'espace d'entrée θ sur la sortie y sachant la relation :

$$y = \mathcal{M}_p(\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_k, \dots, \theta_p)f. \quad (4.10)$$

Pour cette analyse, on considère une granulométrie en nombre f modélisée par une distribution log-normale ($A' = 10^{11}$, $\mu' = 200 \times 10^{-9}$, $\sigma' = 1.1$). Ce choix est sensé représenter un cas classique de granulométrie en nombre que l'on peut obtenir à partir d'un aérosol monodispersé composé de billes de latex (billes présentes en solution liquide que l'on met en suspension par atomisation). La figure 4.4 présente la fonction f et les comptages associés lorsque les paramètres du modèle physique sont fixés à leurs valeurs nominales. La réponse du compteur présente 3 pics de concentration relatifs respectivement aux particules monochargées (le pic le plus concentré n'est autre que le 3^{ème} pic), aux particules chargées 2 fois (le 2^{ème} pic) et enfin aux particules chargées 3 fois (le 1^{er} pic).

Pour ce cas test, deux sorties peuvent être considérées. La première est la sortie du modèle physique, autrement dit le comptage des particules en fonction du temps, ou bien l'estimation de la granulométrie

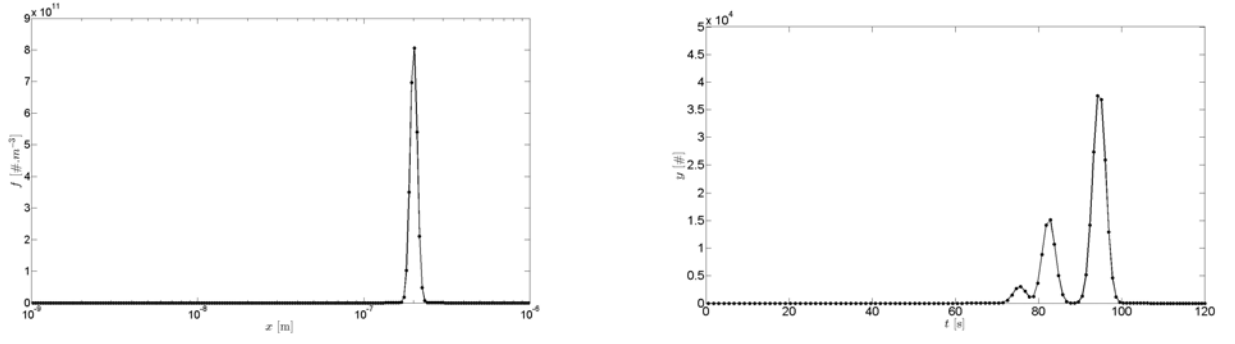


Figure 4.4: Distribution analytique (figure de gauche) et la valeur moyenne des comptages associés en prenant la valeur nominale des paramètres du système (figure de droite).

en nombre suite à l'inversion. Ces deux sorties sont fonctionnelles. Notre choix se porte sur la sortie du modèle direct.

Nous recourons ensuite à certains représentants scalaires pour caractériser la variabilité de cette sortie fonctionnelle. Les 8 critères suivants sont alors utilisés :

1. Ratio entre aire sous la sortie courante et aire de référence (aire obtenue lorsque les paramètres sont fixés à leurs valeurs nominales)
2. Valeur de l'erreur quadratique moyenne
3. Temps d'apparition du 1^{er} pic
4. Valeur du comptage au 1^{er} pic
5. Temps d'apparition du 2^{ème} pic
6. Valeur du comptage au 2^{ème} pic
7. Temps d'apparition du 3^{ème} pic
8. Valeur du comptage au 3^{ème} pic

On peut penser que les 6 derniers critères peuvent se réduire à seulement 2 critères. En effet, les critères 3, 5 et 7 tendent à traduire la translation temporelle des pics et si une translation s'opère sur le 1^{er} pic, alors elle devrait s'appliquer aussi sur le 2^{ème} et ainsi de suite. Les critères 4, 6 et 8 quant-à eux expriment le changement d'amplitude au niveau des pics et de la même manière, on sait qu'une baisse de la valeur du comptage au pic présentant les valeurs les plus fortes (pic 3) se traduira par une baisse respective des pics aux valeurs les plus faibles (pics 2 et 1) relatifs aux particules multi-chargées. Toutefois, il sera intéressant de confirmer ces hypothèses.

Jusqu'alors, la sortie est caractérisée par différentes quantités scalaires mais pour autant le temps de calcul requis pour une simulation reste important, il est donc primordial de réduire le nombre d'appels au code numérique nécessaire à l'analyse de sensibilité.

La prochaine section traite d'une méthode dite de criblage (ou plus connue sous son terme anglais «screening») qui présente l'avantage d'un faible coût computationnel. Cependant, ce faible nombre d'appels au code a une contrepartie puisque la mesure de sensibilité est qualitative.

Plan de Morris : définition de la méthode

Différentes techniques de criblage ont été décrites dans la littérature. Une des plus simples est celle qui consiste à évaluer à tour de rôle l'effet de la variation d'un paramètre θ_k sur la sortie y sachant que les autres paramètres θ_k tels que $\theta_k \neq \theta_{k'}$ sont fixés à leurs valeurs nominales. L'étude des dérivés partielles $\left(\frac{\partial y}{\partial \theta_k}\right)_{k=1,\dots,p}$ conduit à l'estimation de la sensibilité locale de la sortie à chaque paramètre.

4.2 Estimation de la granulométrie en nombre d'un aérosol par SMPS

Encore une fois de telles techniques permettent de hiérarchiser l'influence des paramètres (sensibilité relative) et non de quantifier la part de variabilité sur la sortie y induite par chaque paramètre. On parle de techniques OAT (pour «One At a Time»). [Morris, 1991] définit un plan expérimental pour lequel l'exploration de l'espace des entrées est réalisée par des parcours OAT aléatoires individualisés. Pour se faire, l'espace des paramètres d'entrée est discrétisé en n_M niveaux avec un pas Δ . Par exemple, si on note y_1 le représentant scalaire correspondant au 1^{er} critère défini précédemment, soit $e1_k$ l'effet élémentaire de la variable θ_k associé à ce critère, alors $e1_k$ est approximé par différences finies comme suit :

$$e1_k(\theta) = \frac{\partial y_1(\theta)}{\partial \theta_k} = \frac{(y_1(\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_k + \Delta, \dots, \theta_p) - y_1(\theta))}{\Delta}. \quad (4.11)$$

Le plan de *Morris* permet de définir aléatoirement différentes trajectoires d'exploration de l'espace des entrées, la moyenne et l'écart-type de ces effets sont ensuite calculés pour chacun des paramètres sur l'ensemble des trajectoires (correspondant au nombre de réplicats choisi pour le plan d'expérience). La représentation graphique de l'écart-type des effets élémentaires en fonction de la moyenne des effets élémentaires offre finalement un moyen de hiérarchisation relative de l'influence des paramètres.

Discrétisation de l'espace des entrées

Le tableau 4.2 expose la discrétisation de l'espace des entrées effectuée pour la mise en œuvre de la méthode de *Morris*. Il est à noter que contrairement à la description de méthode de *Morris* où le pas de discrétisation Δ est identique pour chaque paramètre θ_k , cette fois le pas dépend du paramètre ($\Delta = \Delta_k$). Les plages de variations des différents paramètres ont été définies suite à discussion avec les experts dans le domaine d'application. Plutôt que de statuer précisément de ces bornes de variations, il est important de traduire le poids de la perturbation d'une entrée, si infime soit-elle, sur la sortie. Considérant la fonction f définie en figure 4.4, les comptages CNC simulés pour le plan de Morris

Tableau 4.2: Liste des paramètres incertains du modèle physique et leurs plages de variations pour l'analyse de sensibilité.

Type	Variable	Unité	Borne inf	Valeur	Borne sup	Numéro
Tension		[V]				
Tension minimale	U_{min}	-	9.530	10.013	10.533	1
Tension maximale	U_{max}	-	9111.25	9590.79	10070.33	2
Temps du système		[s]				
Temps de scanning	t_s	-	118	120	122	3
Temps de transport	t_d	-	3.00	3.53	4.00	4
Temps de résidence	t_f	-	7.00	7.52	8.00	5
Géométrie du DMA		[m]				
Rayon interne des électrodes	r_1	-	0.009364	0.009370	0.009376	6
Rayon externe des électrodes	r_2	-	0.019590	0.019610	0.019630	7
Longueur du DMA	L	-	0.44147	0.44369	0.44591	8
Débits à l'intérieur de la colonne DMA		[lpm]				
Débit d'air filtré	Q_{sh}	-	2.90	3.00	3.10	9
Débit d'aérosol	Q_a	-	0.295	0.300	0.305	10
Débit de l'échantillon	Q_{cpc}	-	0.295	0.300	0.305	11
Débit en excès	Q_{ex}	-	2.90	3.00	3.10	12
Température		[K]				
Température absolue du gaz porteur	T	-	293.50	294.00	294.50	13
Pression		[kPa]				
Pression absolue du gaz porteur	P	-	97.70	101.70	105.70	14
Facteurs de Cunningham		[]				
Facteur 1	A	-	1.1420	1.1650	1.2310	15
Facteur 2	B	-	0.4695	0.4830	0.5580	16
Facteur 3	C	-	0.9970	0.9970	1.1783	17
Masses ioniques		[amu]				
Masse des ions positifs	m_I^+	-	109	140	290	18
Masse des ions négatifs	m_I^-	-	50	101	140	19
Mobilités ioniques		[cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹]				
Mobilité des ions positifs	Z_I^+	-	1.15	1.35	1.40	20
Mobilité des ions négatifs	Z_I^-	-	1.35	1.60	1.90	21

à 21 paramètres, 5 niveaux par paramètre et 10 réplicats (autrement dit 10 trajectoires différentes

pour l'exploration de l'espace des entrées) sont donnés en figure 4.5. Les deux effets majeurs des

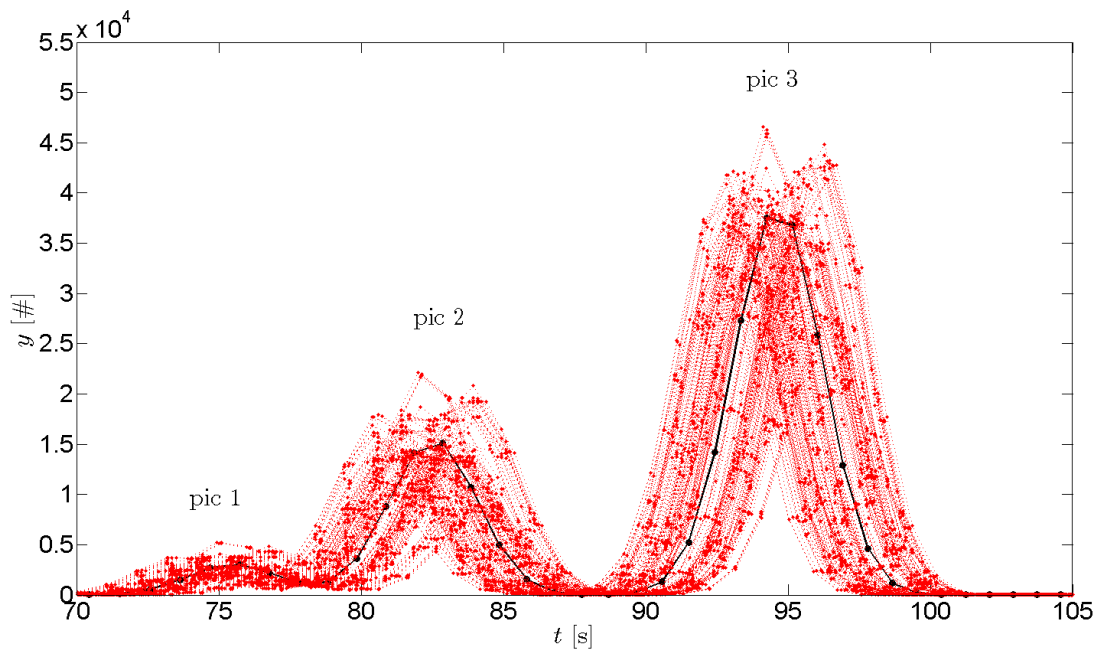


Figure 4.5: Réponses simulées pour un plan de *Morris* à 21 paramètres, 5 niveaux par paramètre et 10 réplicats, pour un total de 210 simulations.

perturbations des paramètres d'entrée sont la translation temporelle et un changement d'amplitude des pics. A présent, il s'agit d'utiliser ces résultats pour sélectionner les paramètres prépondérants.

Discrimination des paramètres d'influence

Les simulations issues du plan de *Morris* permettent le calcul de chacun des 8 critères précédemment explicités. L'interrogation quant-à la redondance des critères va par la même occasion pouvoir être levée.

Les figures 4.6 et 4.7 illustrent respectivement les valeurs prises pour les critères 3, 5, 7 et les critères 4, 6, 8. Comme attendu, les profils sont similaires pour chacun des pics aussi bien pour les critères traduisant la translation temporelle que ceux caractérisant la valeur du comptage. Ainsi, le choix des paramètres influents se fera sans redondance en éliminant les critères 3, 4, 5 et 6.

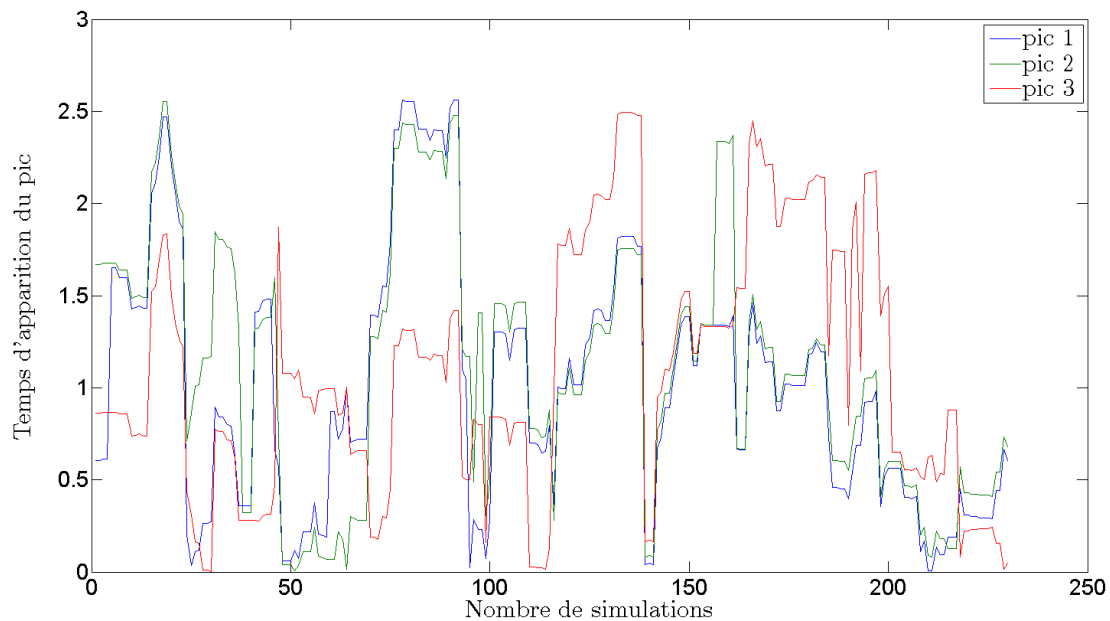


Figure 4.6: Temps d'apparition des pics (critères 3, 5 et 7) pour l'ensemble des simulations.

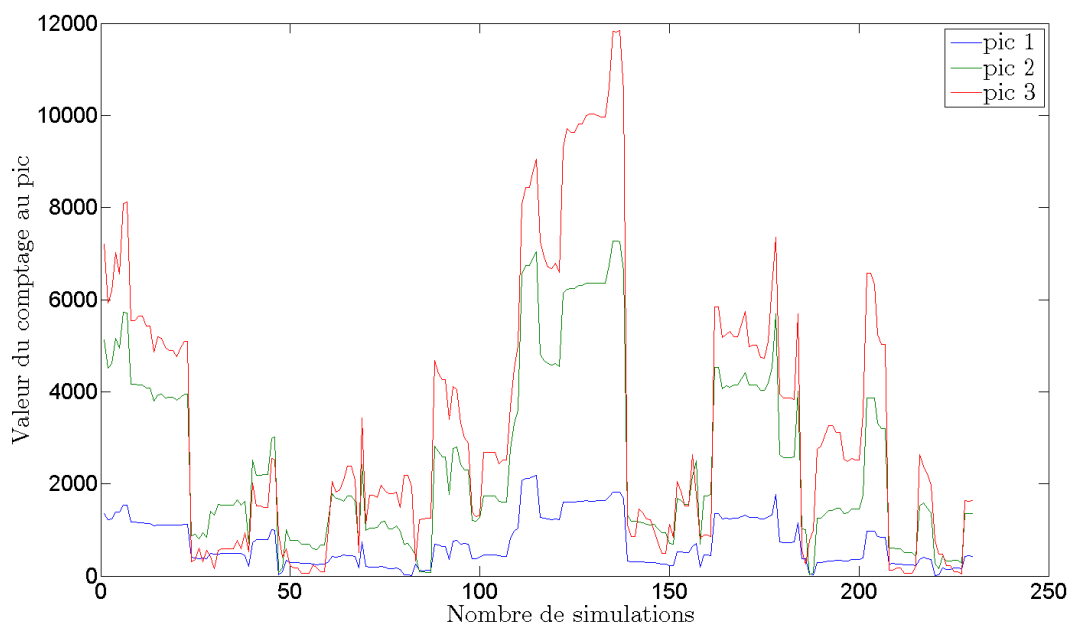


Figure 4.7: Valeur du comptage aux pics (critères 4, 6 et 8) pour l'ensemble des simulations.

Les figures 4.8 à 4.11 montrent l'écart-type sur les 10 réplicats des effets élémentaires en fonction de la moyenne des effets pour les critères 1, 2, 7 et 8. Les résultats suggèrent de nombreuses interactions entre les divers paramètres. De plus, d'un critère à l'autre, la hiérarchisation est quasi-identique. 3 groupes de paramètres se distinguent :

- le premier groupe présentant les plus fortes interactions est composé des paramètres numérotés 6, 7, 9, 10, 11, 12, 20, 21,
- le deuxième groupe présentant des interactions dont l'intensité est environ 2 ordres de grandeur plus faible que celles du premier groupe : paramètres numérotés 1,3,5,8,13,15,16,17,18,19,

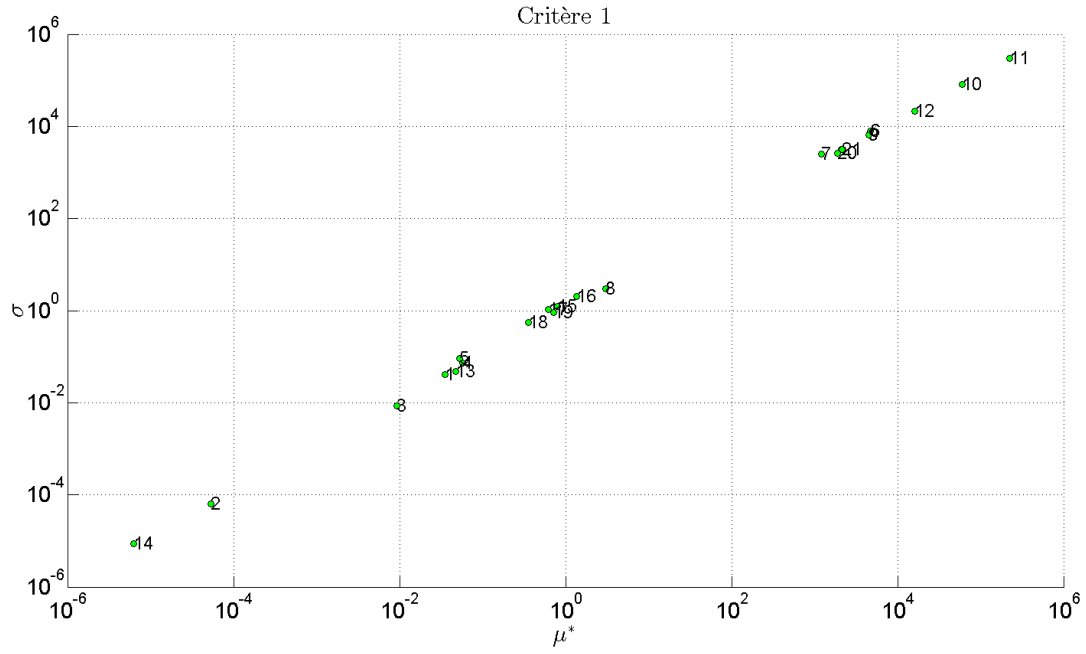


Figure 4.8: Écart-type estimé des effets élémentaires en fonction de la moyenne estimée des effets élémentaires pour le critère numéro 1.

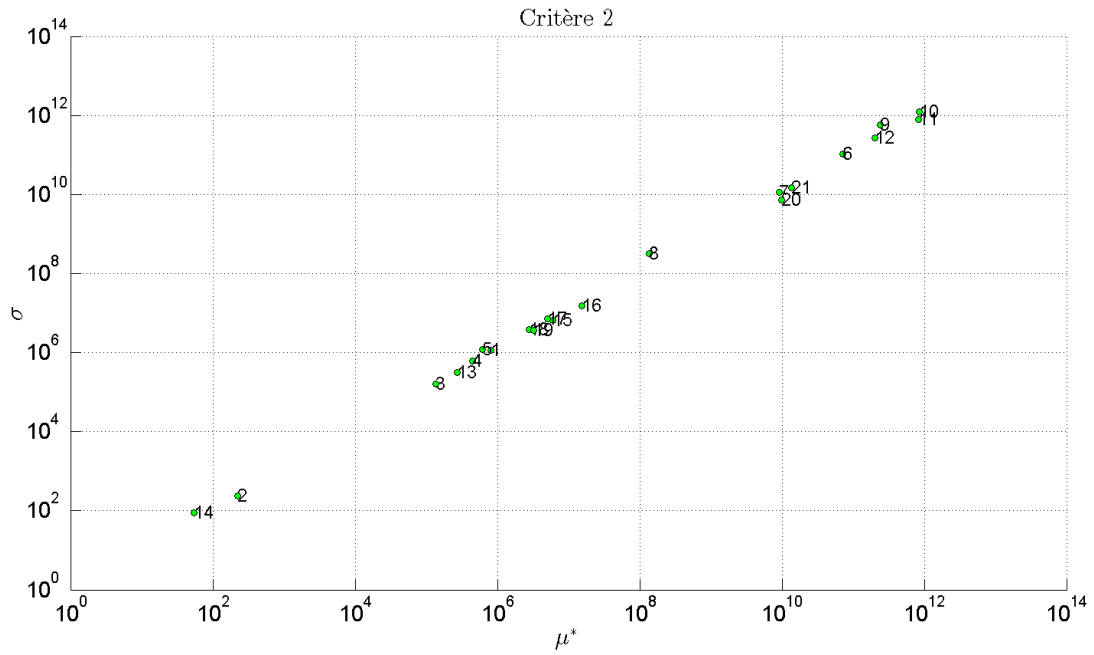


Figure 4.9: Écart-type estimé des effets élémentaires en fonction de la moyenne estimée des effets élémentaires pour le critère numéro 2.

- Le dernier groupe présentant les plus faibles interactions (environ 8 ordres de grandeur plus faibles que celles du premier groupe et plus de 2 ordres de grandeur par rapport à celles du deuxième groupe) est composé des deux paramètres numérotés 2 et 14.

Cette analyse qualitative ne permet donc pas de discriminer des paramètres sans aucune influence sur la sortie, pour autant, elle nous conforte dans l'idée que les paramètres du modèle sont très liés. De

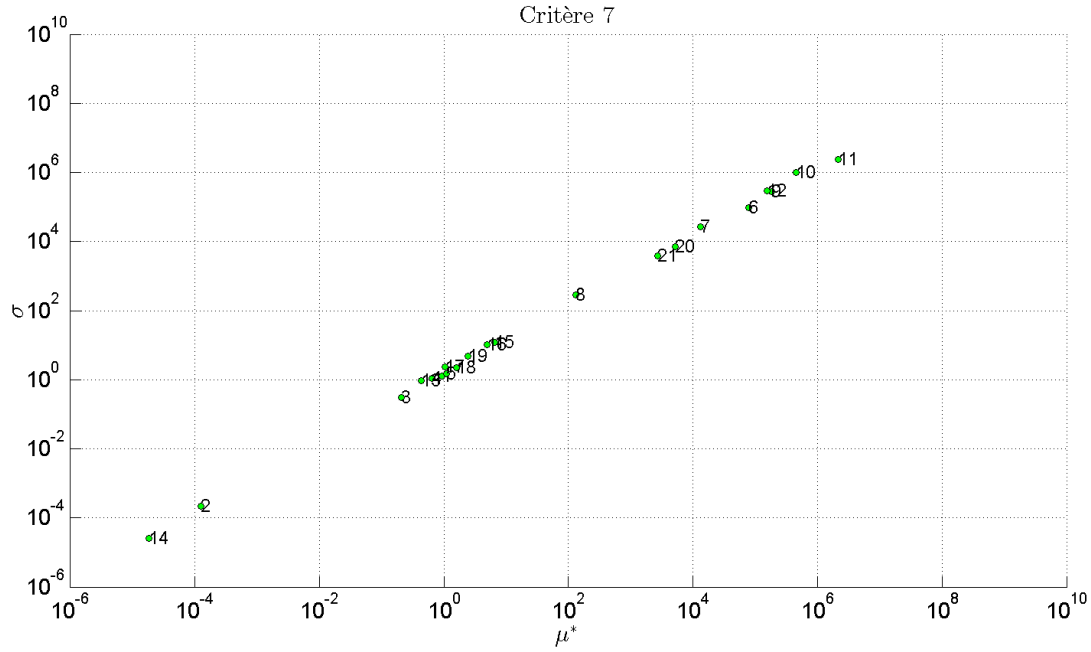


Figure 4.10: Écart-type estimé des effets élémentaires en fonction de la moyenne estimée des effets élémentaires pour le critère numéro 7.

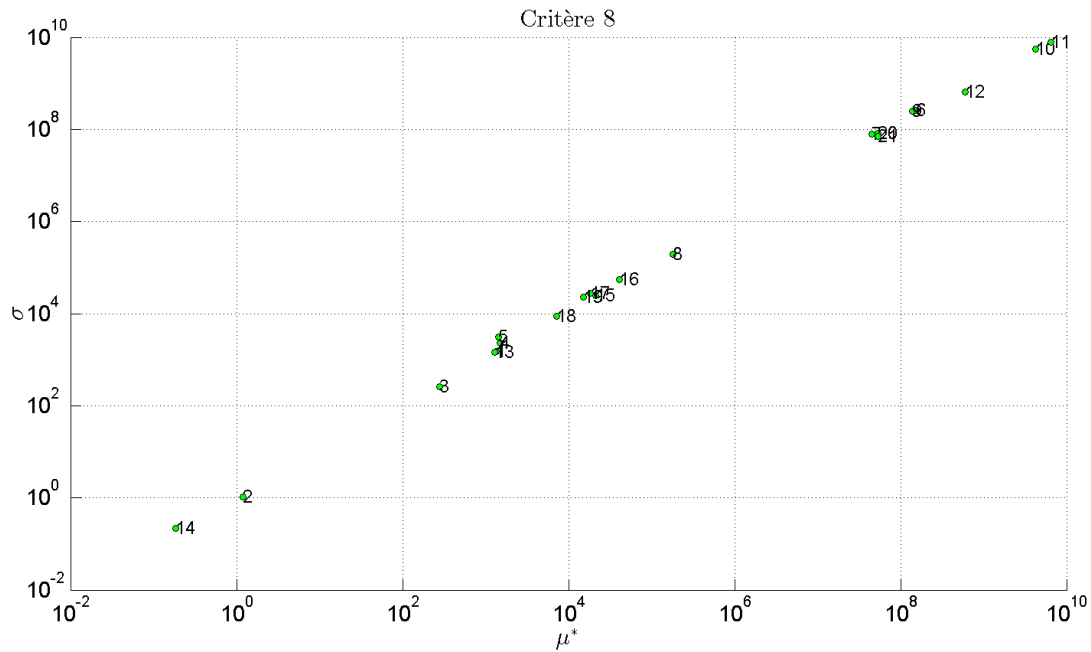


Figure 4.11: Écart-type estimé des effets élémentaires en fonction de la moyenne estimée des effets élémentaires pour le critère numéro 8.

plus, les résultats de la méthode confirme l'influence majeure des débits à l'intérieur du DMA, des temps de résidence et de transport des particules à travers le système de mesure. En effet, les experts en aérosol abondent dans ce sens.

Cette analyse de sensibilité a été menée sur des données simulées en considérant que le modèle physique est une bonne représentation de la mesure réelle réalisée. Néanmoins, l'évaluation de l'incertitude de mesure ne peut être réalisée qu'en caractérisant les composantes incertaines prenant part à cette mesure comme nous le verrons dans la section suivante.

4.2.3 Caractérisation expérimentale du débit d'air filtré et de la tension à l'électrode centrale du DMA

Certains paramètres du modèle physique sont mesurables directement, d'autres au contraire sont plus difficiles d'accès ou tout simplement non mesurables. Mesurer expérimentalement certains paramètres du modèle va permettre une quantification plus précise de la variabilité et d'éventuels biais sur les paramètres en question. Parmi l'ensemble des paramètres servant à expliciter la réponse du compteur en fonction de la granulométrie en nombre de l'aérosol à l'étude, les mesures du débit d'air filtré Q_{sh} à l'intérieur de la colonne DMA et de la rampe de tension exponentielle appliquée à l'électrode centrale du DMA ont été effectuées. En effet, débits et tension entrent directement dans le calcul de la mobilité électrique, mobilité qui est ensuite utilisée pour la détermination du diamètre de mobilité électrique, d'où le choix réalisé.

Mesure de l'évolution du débit d'air filtré à l'intérieur de la colonne du classificateur DMA

Avant chaque expérimentation, il est demandé à l'utilisateur de fixer une valeur nominale pour le débit d'air filtré Q_{sh} à l'intérieur de la colonne du DMA. Généralement, pour l'étude de fines particules dont la taille n'excède pas une centaine de nanomètres, il est recommandé de choisir un débit important ($Q_{sh} \geq 10$ lpm) afin de se prémunir du dépôt par diffusion sur les parois du classificateur. *A contrario*, pour l'étude de particules dont la taille garantit un impact moins significatif de la diffusion (diamètre supérieur à 100 nm), un débit plus faible est statué (3 lpm ou 6 lpm). Soucieux de caractériser l'évolution du débit Q_{sh} dans les conditions proches de l'expérimentation, 3 valeurs nominales sont étudiées : $Q_{sh} = 3$ lpm, $Q_{sh} = 6$ lpm et enfin $Q_{sh} = 10$ lpm. Le DMA disposant d'un débitmètre massique interne étalonné au LNE et dont le certificat d'étalonnage est fourni en annexe, la mesure consiste uniquement en la récupération des données fournies par ce débitmètre interne. Le temps d'une expérience est fixée à 100 s et 10 réplicats pour chacune des configurations sont réalisés, avec une récupération de la valeur du débit à chaque seconde. Le tableau 4.3 résume l'information sur les

Tableau 4.3: Moyennes et écart-types mesurés par débitmètre massique pour les 3 configurations : $Q_{sh} = 3, 6, 10$ lpm

Exp	Min 1	Moy 1	Max 1	Std 1	Min 2	Moy 2	Max 2	Std 2	Min 3	Moy 3	Max3	Std 3
1	2.9800	3.0008	3.0200	0.0099	5.9300	5.9971	6.0500	0.0183	9.9100	9.9965	10.1000	0.0334
2	2.9800	2.9983	3.0200	0.0091	5.9200	5.9985	6.0800	0.0230	9.9200	9.9893	10.0900	0.0328
3	2.9800	2.9990	3.0300	0.0081	5.9200	6.0001	6.0600	0.0235	9.9000	9.9936	10.1000	0.0394
4	2.9800	2.9977	3.0300	0.0085	5.9000	5.9945	6.0500	0.0233	9.8900	9.9937	10.0800	0.0358
5	2.9800	2.9989	3.0200	0.0071	5.9000	5.9958	6.0800	0.0298	9.9100	9.9924	10.0900	0.0356
6	2.9800	2.9992	3.0200	0.0082	5.9000	5.9935	6.0900	0.0288	9.9100	9.9968	10.0900	0.0342
7	2.9800	2.9984	3.0200	0.0080	5.9000	5.9970	6.0500	0.0254	9.8900	9.9906	10.0700	0.0317
8	2.9800	3.0010	3.0300	0.0087	5.9000	5.9953	6.0700	0.0245	9.8700	9.9967	10.1400	0.0398
9	2.9700	2.9981	3.0300	0.0086	5.9000	5.9976	6.1300	0.0254	9.9300	9.9997	10.1000	0.0278
10	2.9800	3.0000	3.0300	0.0087	5.9500	5.9959	6.0600	0.0212	9.8600	9.9948	10.0900	0.0383

débits mesurés pour chaque configuration par l'intermédiaire de 4 paramètres statistiques que sont le minimum, le maximum, la moyenne et l'écart-type. Les figures 4.12, 4.13 et 4.14 montrent la répartition de ces mêmes débits mesurés pour chacune des configurations et chacune des expériences par l'intermédiaire de 10 histogrammes placés sur la même figure. On remarque une répartition quasi similaire autour de la valeur nominale fixée par l'utilisateur. Comme attendu, plus le débit augmente et plus la dispersion autour de la valeur nominale est importante. Néanmoins, la moyenne de chacun des échantillons est très proche de la valeur nominale fixée au départ, le biais est par conséquent considéré comme négligeable ce qui justifie le classement de ce débit dans le groupe de la dispersion expérimentale uniquement.

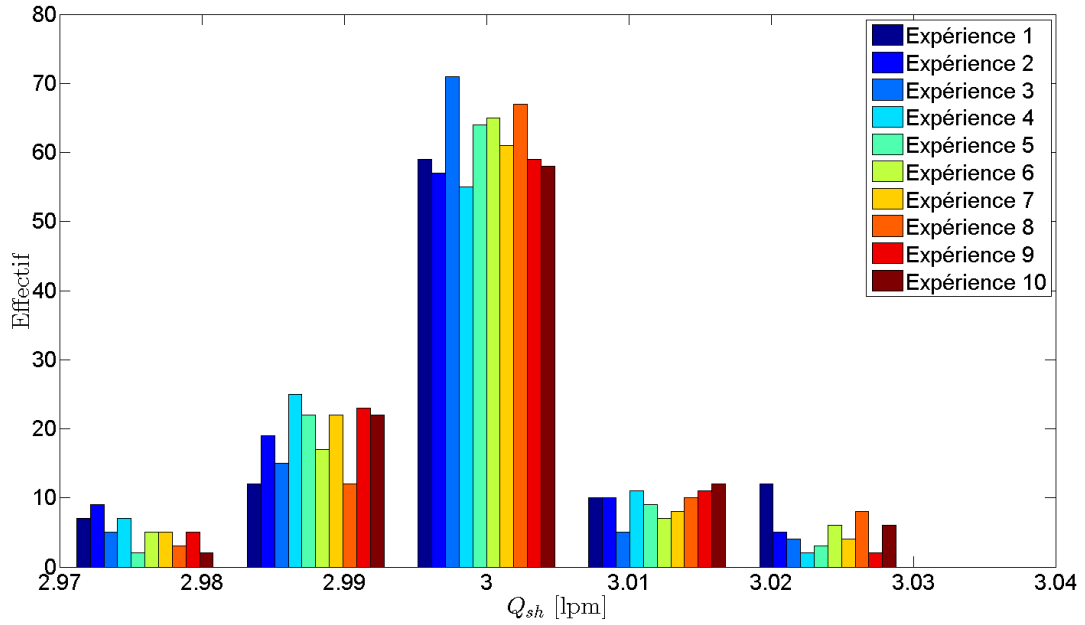


Figure 4.12: Histogrammes du débit mesuré par débitmètre massique pour $Q_{sh} = 3$ lpm pour les 10 expériences.

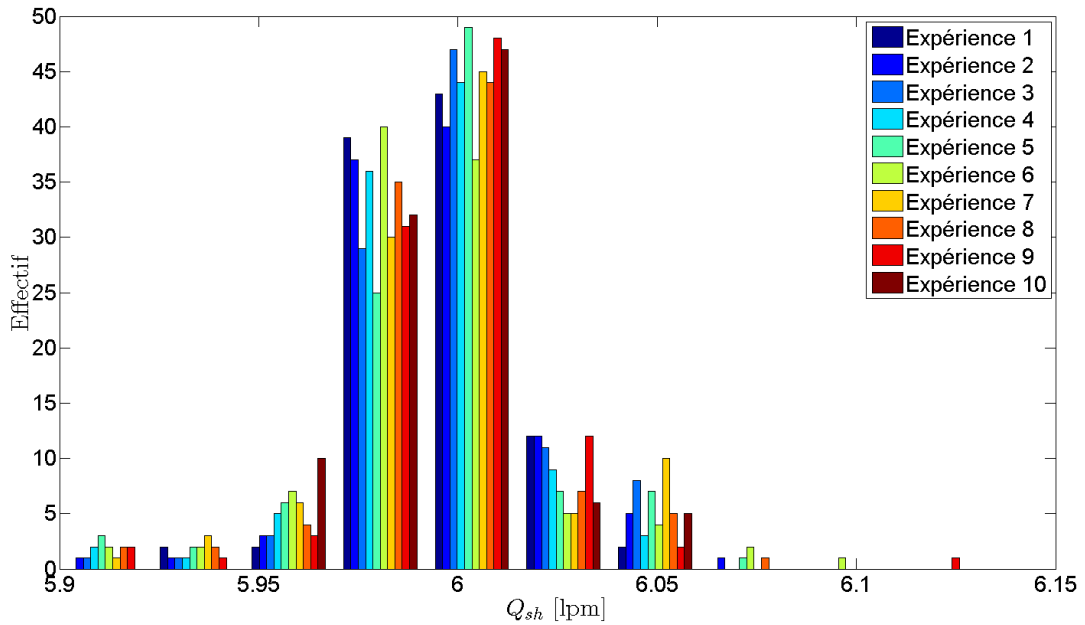


Figure 4.13: Histogrammes du débit mesuré par débitmètre massique pour $Q_{sh} = 6$ lpm pour les 10 expériences.

Mesure de l'évolution de la tension appliquée à l'électrode centrale du classificateur DMA

La tension est directement impliquée dans le calcul de la mobilité électrique des particules lors de la phase de sélection à l'intérieur de la colonne du DMA. Depuis [Wang and Flagan, 1990], le DMA offre la possibilité d'un scrutage continu des diamètres par l'intermédiaire d'une montée en tension en rampe exponentielle qui assure la conservation de la forme de la fonction de transfert du DMA tout en permettant de fournir un résultat de mesure en un laps de temps très court (il n'est plus nécessaire

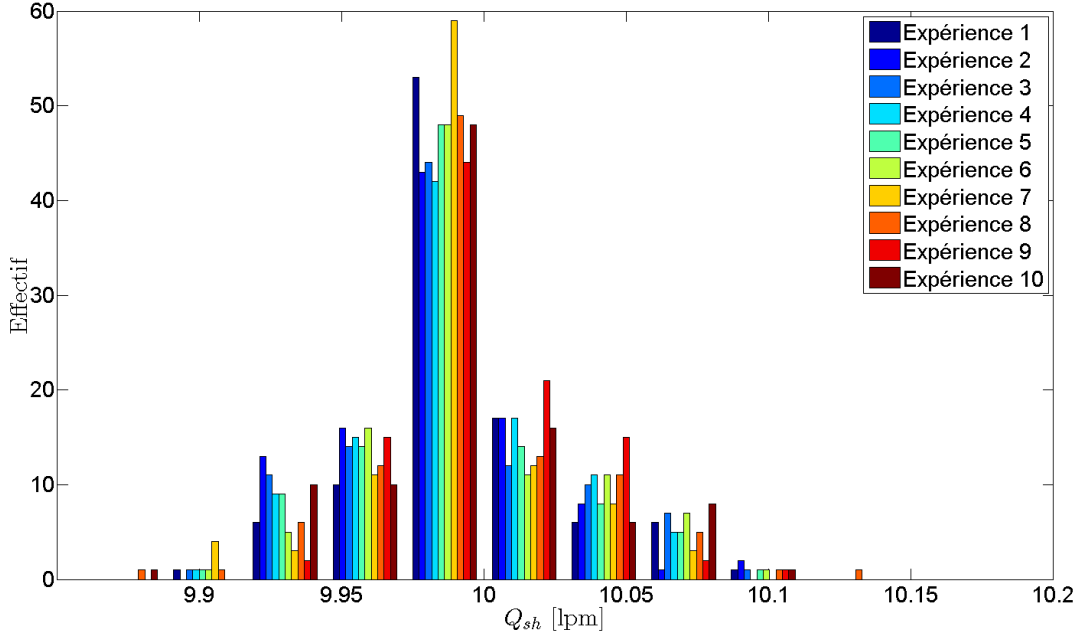


Figure 4.14: Histogrammes du débit mesuré par débitmètre massique pour $Q_{sh} = 10$ lpm pour les 10 expériences.

de scruter chaque diamètre manuellement).

Caractériser l'incertitude associée à la rampe exponentielle de tension devient évidemment de première importance. En effet, l'automatisation de la mesure sur une large gamme de diamètres peut induire de larges erreurs si le contrôle sur la tension n'est pas assuré. L'erreur se traduit alors dans ce cas par une translation temporelle des comptages et, après inversion, une translation de l'estimation \hat{f} sur l'espace des diamètres.

Comme précédemment pour la mesure du débit d'air filtré Q_{sh} , plusieurs configurations sont étudiées afin de couvrir les conditions opératoires les plus couramment utilisées. Le temps de scanning t_s est alors fixé pour 4 configurations respectivement à 30 s, 60 s, 120 s et enfin 180 s. La mesure est effectuée par l'intermédiaire d'un pont diviseur de tension et d'un multimètre à haute résolution (HP 3458A Multimeter) pour une valeur mesurée toutes les 100 ms, en accord avec le rafraîchissement du CNC qui offre une mesure de comptage toutes les 100 ms. 8 réplicats de mesure pour chaque configuration sont réalisés. La tension expérimentale mesurée est notée $U_{exp}(t)$.

La figure 4.15 montre la tension mesurée expérimentalement pour les 8 réplicats de mesure pour chaque configuration (trait bleu) ainsi que le modèle pour la rampe exponentielle de tension utilisé dans le modèle physique (trait rouge). Indépendamment du temps de scanning fixé, un offset apparaît. Le modèle de tension sous-estime la valeur de tension appliquée à l'électrode centrale du DMA. L'erreur d'estimation est donc systématique et doit être corrigée.

Afin de corriger cette erreur qui va induire un biais sur le calcul de la mobilité électrique, il est nécessaire de ré-estimer les paramètres du modèle de tension (t_s , U_{min} et U_{max}). Parmi ces 3 paramètres, l'offset est causé par une sous-estimation de U_{min} et U_{max} , t_s n'ayant pas d'effet. Les estimations de U_{min} et U_{max} sont notées respectivement \hat{U}_{min} et \hat{U}_{max} . Ces nouveaux paramètres sont calculés comme ceux qui minimisent l'erreur quadratique moyenne aux mesures expérimentales pour chaque temps t comme suit :

$$\left(\hat{U}_{min}, \hat{U}_{max} \right) = \arg \min_{(U_{min}, U_{max})} \left\| U_{min} \exp \left(\frac{t}{t_s} \times \log \left(\frac{U_{min}}{U_{max}} \right) \right) - U_{exp}(t) \right\|^2. \quad (4.12)$$

Ces estimations réalisées, les erreurs relatives aux valeurs U_{min} et U_{max} utilisées pour la définition du modèle de tension original, notées respectivement $\epsilon_{r,min}$ et $\epsilon_{r,max}$, sont calculées.

Les tableaux 4.4 et 4.5 présentent respectivement les valeurs calculées de $\epsilon_{r,min}$ et $\epsilon_{r,max}$ pour la tension

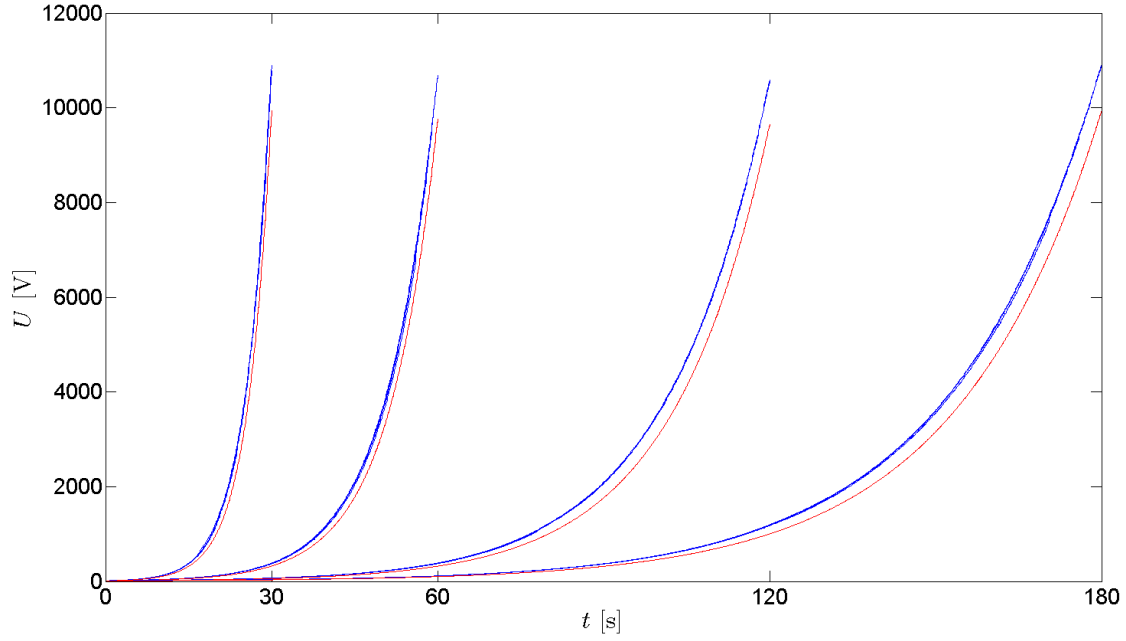


Figure 4.15: 10 Mesures de la tension à l'électrode centrale du DMA pour différents temps de scanning t_s (30 s, 60 s, 120 s, 180 s).

minimale et la tension maximale pour les 4 temps de scanning considérés et chaque réplicat de mesure.

Pour un temps de scanning donné, la correction du biais sur chacun des paramètres U_{min} et U_{max}

Tableau 4.4: Erreur relative à l'estimation originale de la tension minimale U_{min} pour divers temps de scanning t_s (30 s, 60 s, 120 s, 180 s).

Exp	$\epsilon_{r,min}(t_s = 60 \text{ s})$	$\epsilon_{r,min}(t_s = 120 \text{ s})$	$\epsilon_{r,min}(t_s = 180 \text{ s})$	$\epsilon_{r,min}(t_s = 30 \text{ s})$
1	0.3916	0.3986	0.3575	0.4272
2	0.4109	0.4273	0.3649	0.5399
3	0.3769	0.4171	0.2893	0.5849
4	0.3540	0.4167	0.3540	0.4446
5	0.3748	0.4266	0.3784	0.5929
6	0.3750	0.4623	0.2772	0.4921
7	0.1888	0.4069	0.3413	0.4694
8	0.3871	0.4301	0.3787	0.4428

Tableau 4.5: Erreur relative à l'estimation originale de la tension maximale U_{max} pour divers temps de scanning t_s (30 s, 60 s, 120 s, 180 s).

Exp	$\epsilon_{r,max}(t_s = 60 \text{ s})$	$\epsilon_{r,max}(t_s = 120 \text{ s})$	$\epsilon_{r,max}(t_s = 180 \text{ s})$	$\epsilon_{r,max}(t_s = 30 \text{ s})$
1	0.1034	0.1007	0.1019	0.1153
2	0.1033	0.0976	0.1024	0.0931
3	0.1050	0.1000	0.0951	0.1086
4	0.0969	0.0982	0.0984	0.1160
5	0.1112	0.0977	0.0977	0.0974
6	0.0976	0.0992	0.0978	0.1180
7	0.0999	0.0994	0.1028	0.0957
8	0.1035	0.1009	0.0990	0.1116

originaux est alors effectuée de la façon suivante :

$$U_{min} = U_{min}(1 + \bar{\epsilon}_{r,min}), \quad (4.13)$$

$$U_{max} = U_{max}(1 + \bar{\epsilon}_{r,max}), \quad (4.14)$$

où $\bar{\epsilon}_{r,min}$ et $\bar{\epsilon}_{r,max}$ représentent les moyennes sur les 8 réplicats de mesure de $\epsilon_{r,min}$ et $\epsilon_{r,max}$.

Ne pouvant caractériser expérimentalement chacune des sources d'incertitude du système à l'étude que ce soit par la non mesurabilité des sources (sources définies par des modèles approchant la réalité par exemple) ou le manque de moyens techniques pour leurs mesures (mesure de la distribution des mobilités ioniques pour chaque mesure ou du temps de transport et de résidence des particules t_d et t_f), la modélisation intervient pour caractériser le reste des composantes incertaines.

Nous avons vu précédemment que la dispersion expérimentale était engendrée par la variation de nombreux paramètres. Toutefois relier les variations individuelles de chaque paramètre à la variabilité fonctionnelle observée est difficile. Pour cette raison, dans la prochaine section, nous proposons de modéliser la dispersion expérimentale en fonction du mesurande à l'étude.

4.2.4 Modélisation de la dispersion expérimentale

Considérant les 2 configurations précédemment établies menant à l'estimation de mesurandes distincts, la méthodologie proposée pour la caractérisation du groupe appelé dispersion expérimentale se scinde encore une fois en 2. Le traitement spécifique à chaque configuration est défini en fonction de l'information disponible. Par information, il faut entendre nombre d'observations à disposition. En présence d'un nombre suffisant de réplicats de mesure, cadre généralement associé à la caractérisation du premier mesurande, l'inférence statistique est choisie. Elle conduit à l'estimation des paramètres d'un modèle prédéfini. Lorsque cette fois une seule expérience est disponible, comme c'est le cas pour la caractérisation du second mesurande, une modélisation complète est requise. Le modèle permettra alors, en fonction des comptages observés, de définir la dispersion associée. Les sections 4.2.4 et 4.2.4 définissent la dispersion expérimentale pour chacun des mesurandes.

Cas du premier Mesurande : Inférence des paramètres du processus gaussien non stationnaire

Un ensemble d'observations $\left(y_i^{[r]}\right)_{i=1,\dots,m_c}^{r=1,\dots,N_r}$ ont été effectuées pour caractériser la granulométrie en nombre de l'aérosol à l'étude. Pour rappel, ce mesurande est supposé stable sur l'ensemble des mesures.

Certains auteurs distinguent les modèles statistiques pour représenter les comptages en fonction de la concentration faible ou forte en particules vue par le compteur. Un processus poissonnien non stationnaire est alors utilisé pour les faibles concentrations tandis qu'un processus gaussien non stationnaire est préféré pour les fortes concentrations.

Toutefois, le DMA lorsqu'il opère en mode scanning vient scruter un ensemble de diamètres associés à des régions du mesurande, et par conséquent, au cours d'une même acquisition, la concentration en particules passe d'un stade de faibles concentrations pour certaines régions du mesurande à de fortes concentrations pour d'autres régions et vice versa. Sachant que la modélisation par processus poissonnien n'offre une meilleure représentation qu'à de très faibles niveaux de concentration, le choix est fait de considérer une modélisation par processus gaussiens qui présentera un avantage sur la majeure partie des mesures communément réalisées. De plus, les expérimentateurs souhaitent une estimation fidèle aux plus fortes concentrations ce qui motive notre choix. Dans ce cas, la modélisation intègre à la fois la dispersion expérimentale (variabilité paramétrique partielle, instabilité causée par le processus de génération) et le bruit de mesure.

Les observations sont donc considérées comme des réalisations d'un processus gaussien non stationnaire autocorrélé. L'autocorrélation d'un processus traduit simplement la corrélation du processus par rapport à une version décalée dans le temps de lui même ou, autrement dit, elle traduit les dépendances internes du signal.

Soit Y_t un processus aléatoire à valeurs continuellement réelles, sa fonction d'autocorrélation γ est définie comme la fonction $\gamma : (h, t) \in \mathbb{R}^2 \mapsto \gamma_{t,h}$ telle que :

$$\gamma_{t,h} = \frac{E[(Y_t - \mu_t)(Y_{t+h} - \mu_{t+h})]}{\sigma_t \sigma_{t+h}}, \quad (4.15)$$

où h est le décalage temporel, σ_t et μ_t sont respectivement les moyennes et écart-type du processus Y au temps t . L'équation (4.15) représente la fonction d'autocorrélation d'un processus continu, or dans le cas à l'étude une représentation discrète est choisie.

L'estimation de la fonction d'autocorrélation empirique est alors donnée, $\forall k$, comme suit :

$$\gamma_{i,k} = \frac{1}{m_c - k - 1} \sum_{i=0}^{m_c-k-1} \frac{(y_i - \mu_i)(y_{i+k} - \mu_{i+k})}{\sigma_i \sigma_{i+k}}. \quad (4.16)$$

Cette estimation permet en réalité le calcul des vecteurs respectivement des moyennes et des écart-types représentés par μ et σ . Le calcul direct de cette somme étant coûteux pour des signaux de grande taille, un réarrangement en produit de convolution circulaire en utilisant l'algorithme FFT permet de contourner ce problème.

Connaissant la fonction d'autocorrélation, les observations sont vues comme les réalisations d'un processus gaussien \tilde{y} défini à partir de l'information extraite à partir des données réelles. L'inférence des paramètres de ce processus va alors permettre de disposer d'un ensemble de signaux présentant des caractéristiques statistiques similaires à l'échantillon original y . La fonction d'autocorrélation empirique définie par l'équation (4.16) prend une forme matricielle notée Γ . Le noyau d'autocorrélation pour la définition du processus \tilde{y} est obtenu par décomposition de la matrice Γ en valeurs singulières, ce qui revient à exprimer Γ comme $\Gamma = U\Sigma V$ ou plus précisément $\Gamma = U\Sigma U^t$ dans ce cas. \tilde{y} est alors défini à partir de cette décomposition de la façon suivante :

$$\tilde{y} = (U\sqrt{\Sigma}z)\text{diag}(\sigma) + \mu, \quad (4.17)$$

où $z \sim \mathcal{N}(0, I_{m_c})$ avec I_{m_c} la matrice identité de dimension m_c , μ et σ étant respectivement les vecteurs des moyennes et des écart-types pour chaque classe sur l'ensemble des N_r réplicats. Leurs expressions sont les suivantes :

$$\mu_i = \frac{1}{N_r} \sum_{r=1}^{N_r} y_i^{[r]}, \quad \sigma_i = \sqrt{\frac{1}{N_r - 1} \sum_{r=1}^{N_r} (y_i^{[r]} - \mu_i)^2}, \quad i = 1, \dots, m_c. \quad (4.18)$$

Les figures 4.16 et 4.17 présentent les valeurs de l'autocorrélation calculées pour chaque élément de la matrice Γ pour des mesures effectuées respectivement sur une solution de DEHP (huile) et une suspension colloïdale de SiO_2 toutes deux mises en suspension par atomisation. Dans les exemples étudiés, la corrélation temporelle est importante. En effet, l'alternance entre blocs de corrélation à valeurs fortement positives et négatives s'explique par le fait que lorsqu'une déviation temporelle intervient en amont de la «bosse» centrale, elle se propage sur la partie en aval. Il est à noter que les corrélations sont plus faibles pour les plus fortes valeurs de comptage, autrement dit au niveau du mode. De part et d'autre du mode, les corrélations prennent des valeurs comparables au signe près. La présence de multiples bosses comme c'est le cas pour la suspension colloïdale de SiO_2 confirme l'analyse faite concernant la corrélation temporelle dans le cas d'une seule bosse.

Les figures 4.18 et 4.19 proposent une comparaison graphique des réalisations du processus \tilde{y} avec les mesures réelles y pour chacun des 2 exemples considérés (aérosol de DEHP et suspension colloïdale de SiO_2). Inférer les paramètres du processus gaussien est une tâche simplifiée par l'augmentation du nombre de réplicats de mesure. Dans les exemples proposés, ce nombre N_r est respectivement de 18 et 40.

Cas du second Mesurande : Modélisation des paramètres du processus gaussien non stationnaire

Une seule observation $(y_i)_{i=1, \dots, m_c}$ est disponible cette fois car le mesurande change d'une mesure à l'autre. Dans cette configuration, l'inférence est purement impossible, il s'agit donc de modéliser la

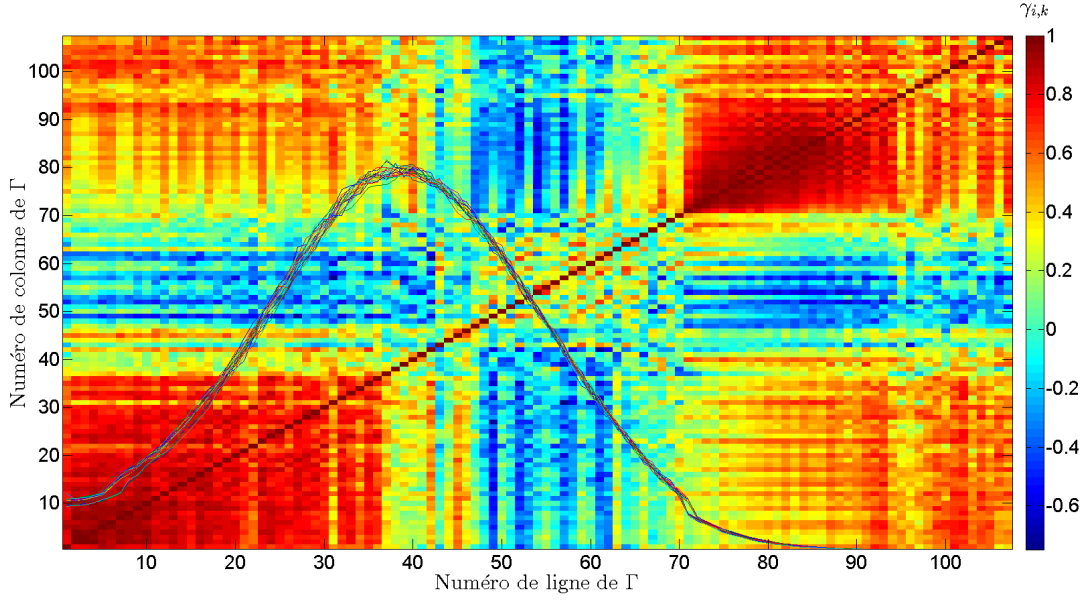


Figure 4.16: Valeurs de l'autocorrélation empirique pour chaque élément de la matrice Γ et les comptages mesurés pour un aérosol stable à base d'huile (DEHP) en premier plan.

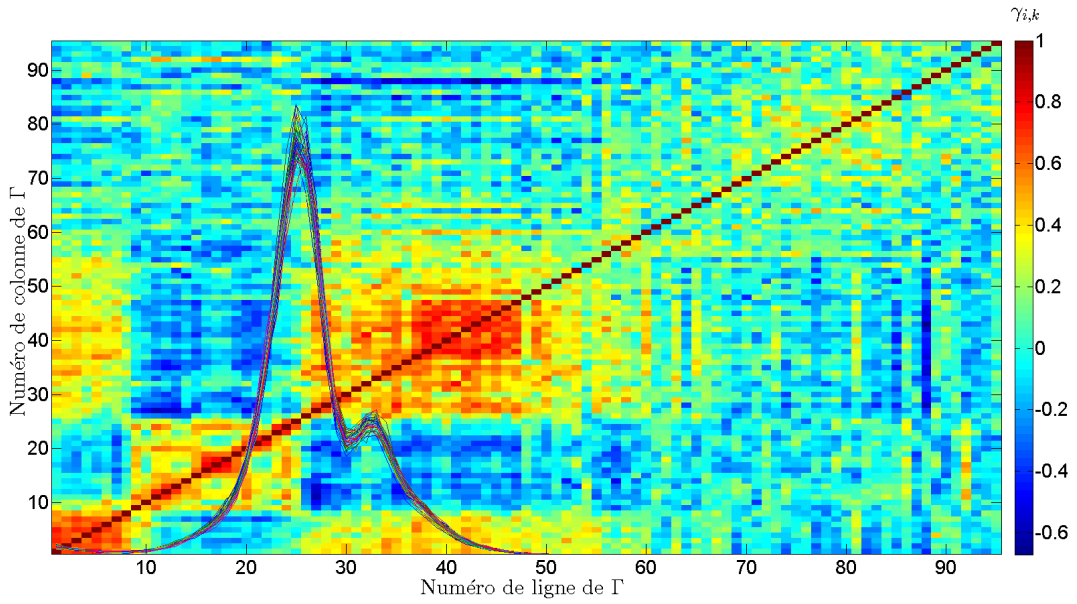


Figure 4.17: Valeurs de l'autocorrélation empirique pour chaque élément de la matrice Γ et les comptages mesurés pour une suspension colloïdale de SiO_2 en premier plan.

dispersion du signal mesuré.

L'observation y sera considérée comme une réalisation d'un processus gaussien non stationnaire \tilde{y} avec $\tilde{y} \sim \mathcal{N}(\mu_{\tilde{y}}, \Sigma_{\tilde{y}})$. La différence principale par rapport à l'approche mise en œuvre dans le cas du premier mesurande est la non prise en compte de l'autocorrélation, ainsi, $\Sigma_{\tilde{y}} = \sigma_y^2 I_{m_c}$ où σ_y^2 est la variance des observations. Ce choix de modélisation s'impose à nous en raison de l'absence de modèle existant pour la prise en compte des corrélations temporelles.

Dans ce cas précis, nous recourons aux modèles de compteur prenant en compte la coïncidence. La coïncidence est un phénomène intervenant lorsque plusieurs particules arrivent en un laps de temps suffisamment court pour rendre le compteur aveugle au passage de nouvelles particules. Le temps de paralysie du compteur τ_p est spécifique à chaque modèle de compteur. Pour certains compteurs, une correction de la coïncidence est réalisée, ils présentent alors des résultats de comptage déjà traités. Ce

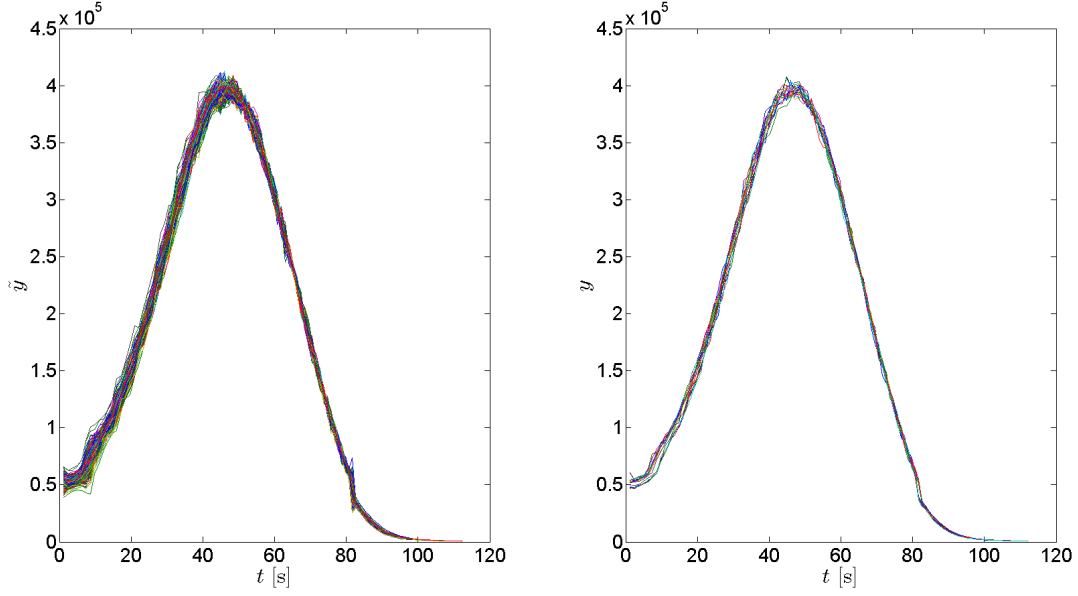


Figure 4.18: 500 Réalisations du processus \tilde{y} et observations réelles y pour l'exemple du DEHP.

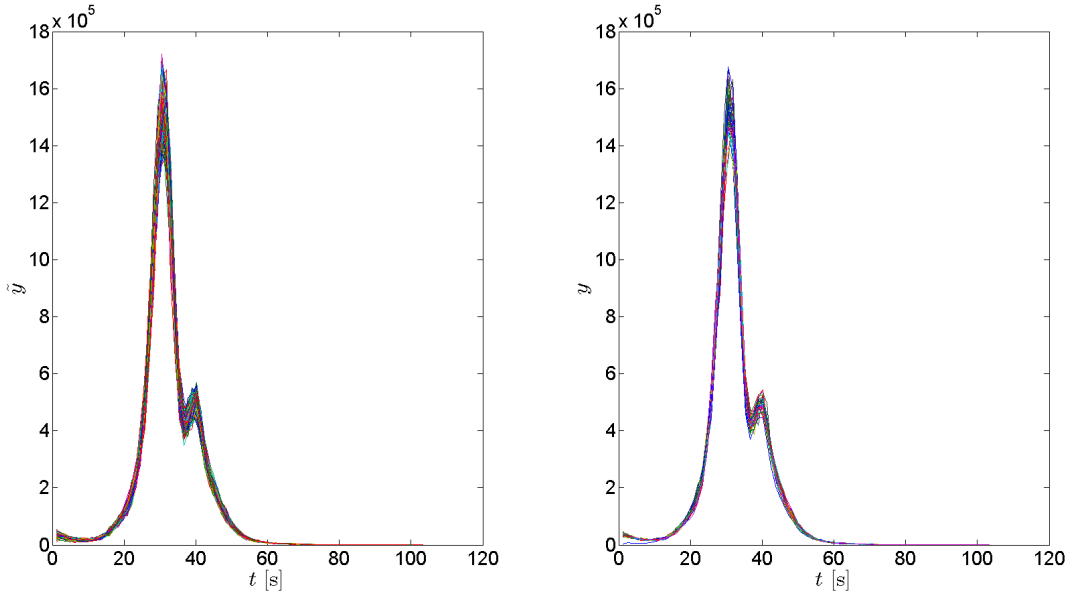


Figure 4.19: 500 Réalisations du processus \tilde{y} et observations réelles y pour l'exemple du SiO_2 .

n'est pas le cas pour le CNC 3022 utilisé lors de l'étude. La théorie de la coïncidence décrit les non linéarités entre comptages mesurés y et comptages vrais y_{vrai} comme suit :

$$y_{vrai} = y \exp(y_{vrai} \tau_p). \quad (4.19)$$

NB : la fonction W de *Lambert* [Corless et al., 1993] est utilisée pour l'estimation notée \hat{y}_{vrai} .

Notre intérêt se porte alors sur la variance des observations pour ce type de compteur avec paralysie. Le modèle de [Kotsen, 1943] est utilisé ici. Il donne une expression du vecteur des variances σ_y^2 dans un cas asymptotique comme suit :

$$\sigma_{y,i}^2 = y_i \left[1 + y_i \left(\left(\frac{\tau_p}{T_c[i]} \right)^2 - 2 \left(\frac{\tau_p}{T_c[i]} \right) \right) \right], \quad i = 1, \dots, m_c. \quad (4.20)$$

Le processus gaussien \tilde{y} est alors défini avec : $\mu_{\tilde{y}} = \hat{y}_{vrai}$ et $\Sigma_{\tilde{y}} = \sigma_{\hat{y}_{vrai}}^2 I_{m_c}$, où $\sigma_{\hat{y}_{vrai}}^2$ est la variance calculée en remplaçant dans l'équation (4.20) la valeur des observations y par l'estimation \hat{y}_{vrai} .

Une telle approche pour la modélisation de la dispersion expérimentale va permettre de générer un nombre important d'observations simulées, observations présentant une variabilité similaire à celle des données réelles dans le cas du premier mesurande et une variabilité similaire à celle induite par le comptage dans le cas du second mesurande. Le recours à la simulation va permettre une estimation de la variance de l'estimateur \hat{f} par simulations de Monte-Carlo comme nous le verrons dans la suite. Il reste maintenant à définir la méthodologie pour propager les sources d'incertitude relatives à la méconnaissance.

4.2.5 Génération des fonctions noyaux aléatoires

La méconnaissance prend différentes formes dans le cadre de la mesure réalisée. En effet, la méconnaissance paramétrique peut provenir de l'existence de différentes valeurs publiées dans la littérature pour un même paramètre. C'est le cas du triplet (A, B, C) de la fonction corrective de *Cunningham* intervenant dans l'équation (2.3) par exemple. Elle peut aussi provenir de paramètres non mesurés avant la mesure ou jamais mesurés comme c'est le cas pour les paramètres géométriques du DMA, le temps de transport et de résidence des particules.

Cette méconnaissance est aussi fonctionnelle lorsque plusieurs modèles existent pour décrire un même phénomène physique. Un exemple est la fonction de transfert du DMA avec ou sans prise en compte de la diffusion des particules. Même si un modèle paraît de prime abord plus évolué que l'autre (modèle de *Stolzenburg* plus élaboré que celui de *Kutson* et *Whitby* par exemple), il est difficile de statuer sur le choix d'un modèle plutôt qu'un autre lorsque la diffusion est quasi-absente.

Pour modéliser la méconnaissance paramétrique et fonctionnelle nous recourons à différents outils : les variables aléatoires, les processus aléatoires et le mélange de modèles. La modélisation envisagée, qu'elle soit pour un paramètre ou une fonction va dépendre de l'information disponible. Ainsi, pour le triplet de *Cunningham* pour lequel on dispose pour chaque élément d'une valeur centrale et de bornes (uniquement 3 valeurs au total pour chaque paramètre), une modélisation par variables aléatoires gaussiennes tronquées sera envisagée comme nous le verrons en section 4.2.5. D'un autre côté, disposant de 10 valeurs pour chaque élément du quadruplet $(Z_I^+, Z_I^-, m_I^+, m_I^-)$ pour l'expression de la loi de charges, nous privilégierions une modélisation par processus aléatoires comme détaillé en section 4.2.5 afin de prendre en compte les corrélations sur l'espace des diamètres.

Ces différentes modélisations vont conduire à la création d'une matrice d'inversion aléatoire pour l'estimation de f pour chaque donnée préalablement simulée comme décrit en section 4.2.4 et 4.2.4. Il faut noter que le traitement de la méconnaissance est similaire pour les 2 mesurandes.

Modélisation des paramètres méconnus du modèle physique par des variables aléatoires

Les paramètres de *Cunningham* : dans le premier chapitre de ce manuscrit, un ensemble de valeurs extraites de la littérature pour le triplet (A, B, C) est donné. Parmi cet ensemble de valeurs, la norme ISO 15900 recommande l'utilisation du triplet publié en 2005 par [Kim et al., 2005]. Les triplets donnés respectivement par *Hutchins et al.* et *Allen et Raabe* sont donnés comme bornes inférieures et supérieures. Partant de cette recommandation, chacun des éléments du triplet est modélisé par une variable aléatoire gaussienne tronquée dont les moyennes respectives sont données par les valeurs de *Kim*. Les variances sont modélisées comme le carré du maximum des erreurs relatives des bornes aux

valeurs centrales :

$$A \sim \mathcal{N}_{[A_H, A_A]} \left(A_K, \left[\max \left(\frac{|A_H - A_K|}{A_K}, \frac{|A_A - A_K|}{A_K} \right) \right]^2 \right), \quad (4.21)$$

$$B \sim \mathcal{N}_{[B_H, B_A]} \left(B_K, \left[\max \left(\frac{|B_H - B_K|}{B_K}, \frac{|B_A - B_K|}{B_K} \right) \right]^2 \right), \quad (4.22)$$

$$C \sim \mathcal{N}_{[C_H, C_A]} \left(C_K, \left[\max \left(\frac{|C_H - C_K|}{C_K}, \frac{|C_A - C_K|}{C_K} \right) \right]^2 \right). \quad (4.23)$$

La figure 4.20 présente l'erreur relative à la fonction de correction de *Cunningham* obtenue avec le triplet (A_K, B_K, C_K) lorsque la fonction C_c est obtenue pour 100 tirages du triplet de variables aléatoires.

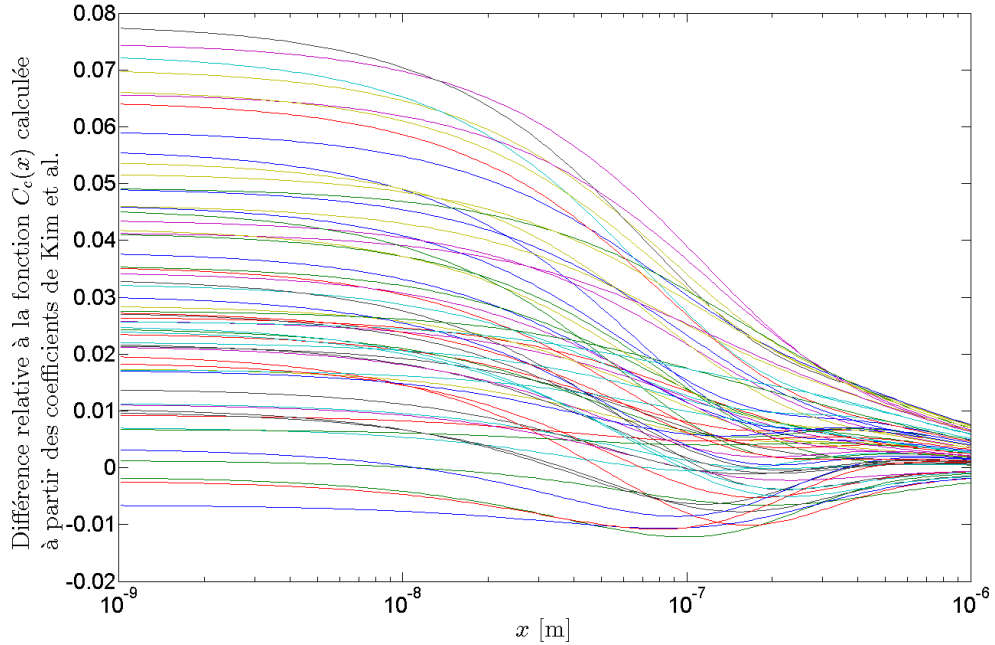


Figure 4.20: Erreur relative à la fonction de correction de *Cunningham* calculée à partir des coefficients de Kim et *al.* pour 100 tirages du triplet de variables aléatoires (A, B, C) .

Les temps de transport et de résidence des particules : Le temps de résidence des particules à l'intérieur du classificateur électrostatique DMA est calculé comme le temps moyen de résidence du gaz dans la colonne. Ce temps moyen t_f dépend des débits et de la géométrie du DMA utilisé par l'équation suivante :

$$t_f = \frac{\pi(r_2^2 - r_1^2)L}{Q_{sh} + Q_a}. \quad (4.24)$$

Sachant que les paramètres géométriques du DMA et de débits sont incertains, la valeur moyenne de t_f est donnée comme la valeur calculée pour ces paramètres fixés à leurs valeurs nominales. Sa variance est estimée par simulations de Monte-Carlo sur les 5 paramètres $(r_1, r_2, L, Q_{sh}, Q_a)$.

La figure 4.21 montre l'histogramme des effectifs des valeurs calculées pour t_f pour un million de simulations des paramètres géométriques et de débits. Les valeurs de t_f sont normalement distribuées (fit gaussien en trait rouge sur la figure) autour de la valeur nominale $t_{f,0} = 7.52$ s calculée dans la configuration choisie. t_f est donc modélisé comme la réalisation d'une variable gaussienne de moyenne $t_{f,0}$ et de variance la variance empirique estimée à partir des simulations de Monte-Carlo (pour le cas illustré, $V(t_f) = 1.6367 \times 10^{-3}$).).

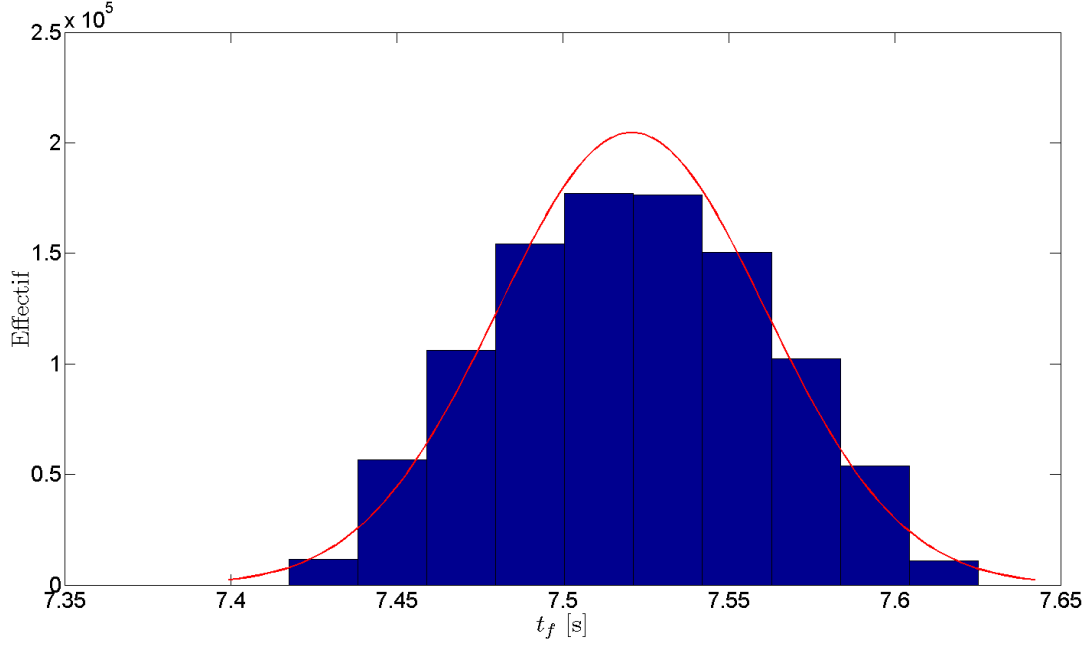


Figure 4.21: Histogramme des échantillons des valeurs calculées pour t_f pour un million de simulations de Monte-Carlo pour la configuration standard où les valeurs nominales des débits sont données par $Q_{sh} = 3$ lpm et $Q_a = 0.3$ lpm.

Concernant le temps de transport t_d des particules entre la sortie du DMA et la chambre de détection du CNC, la valeur moyenne de ce paramètre est extraite du logiciel commercial AIM. Ce temps peut-être déterminé soit par mesure directe du temps de transit entre sélecteur et détecteur ou par injection de particules de taille connue telles que les billes de polystyrène latex (PSL) en choisissant un temps de transit qui décale le pic de la distribution estimé au niveau de la distribution attendue. La deuxième approche est employée par le logiciel AIM fourni avec le SMPS 3936 utilisé.

En l'absence de résultats expérimentaux pour l'estimation de ce temps ou d'une approximation comme c'est le cas pour t_f , la modélisation effectuée est arbitraire. Ainsi, on considère que la valeur centrale est bien estimée par le logiciel car déduite de mesures réelles et la variance de l'estimateur sera quant-à elle modélisée par un pourcentage d'erreur relative à la valeur centrale de 5%. La valeur de 5% étant totalement arbitraire bien que les experts en aérosol intervenant au cours de cette thèse supposent cette valeur proche de la réalité, des expériences devront être menées afin d'estimer fidèlement ce paramètre. Comme précédemment, une modélisation par variable aléatoire gaussienne est choisie pour t_d .

Les paramètres géométriques du DMA : ils ont été mesurés par le NIST dans le cadre de l'évaluation de l'incertitude sur f lorsque le DMA opère en mode manuel. Hormis cette étude, à notre connaissance, aucune autre valeur publiée de l'incertitude associée à ces 3 paramètres dimensionnels n'existe. Encore une fois, la norme ISO 15900 fournit une incertitude standard pour chacun des paramètres. Leurs mesures n'ayant pas été réalisées au cours de la thèse, ces données bien que restreintes sont utilisées. Ainsi, sans plus d'information, une modélisation par variables aléatoires uniformément distribuées est choisie pour modélisées chacun des paramètres. Si on note L_0 , $r_{1,0}$, $r_{2,0}$ et $u(L_0)$, $u(r_{1,0})$, $u(r_{2,0})$ respectivement les valeurs nominales de L , r_1 et r_2 et les incertitudes standards associées, alors la modélisation réalisée est la suivante :

$$L \sim \mathcal{U}([L_0 - u(L_0), L_0 + u(L_0)]), \quad (4.25)$$

$$r_1 \sim \mathcal{U}([r_{1,0} - u(r_{1,0}), r_{1,0} + u(r_{1,0})]), \quad (4.26)$$

$$r_2 \sim \mathcal{U}([r_{2,0} - u(r_{2,0}), r_{2,0} + u(r_{2,0})]). \quad (4.27)$$

NB : les valeurs nominales des paramètres géométriques du DMA sont celles transmises par le constructeur.

Bien que la plupart des composantes incertaines soient de nature paramétrique, certaines composantes sont de nature fonctionnelle. C'est en effet le cas pour la loi de charges, la fonction de transfert du DMA et l'efficacité de détection du CNC. Ce sont des fonctions qui dépendent du diamètre des particules étudiées (Ω est fonction de la mobilité électrique mais la correspondance entre mobilité et diamètre a d'ors-et-déjà été explicitée en équation (2.19)). Les 2 sections suivantes se focalisent sur la modélisation de l'incertitude sur la loi de charges ϕ et la fonction de transfert du DMA Ω par l'intermédiaire respectivement d'un processus aléatoire et d'un paramètre de mélange.

Modélisation de l'incertitude sur la loi de charges par processus gaussiens

Dans le premier chapitre décrivant le modèle physique, la théorie de *Fuchs* pour la modélisation de la loi de charges est présentée. la fonction ϕ peut être calculée connaissant les propriétés ioniques que sont les mobilités et masses des ions positifs et négatifs représentées par les 4 variables Z_I^+ , Z_I^- , m_I^+ , m_I^- . Pour un quadruplet donné, la loi de charges est alors définie pour chaque diamètre x . Ainsi, la méconnaissance est ici l'incertitude occasionnée par un choix différent de quadruplet sachant que les valeurs nominales du quadruplet sont celles fournies par [Reischl et al., 1996]. Comme l'incertitude se propage sur toute la gamme des diamètres, l'intérêt se porte naturellement sur la corrélation en espace entre loi de charges calculées à partir de quadruplets distincts. L'information disponible se résume aux 10 quadruplets décrit dans le tableau 2.2. Cet ensemble de valeurs va rendre possible l'estimation de cette corrélation sur l'espace des diamètres. ϕ est alors modélisée par l'intermédiaire de processus gaussiens autocorrélés non stationnaire en espace dont les paramètres sont estimés à partir des 10 fonctions ϕ calculées (à partir des 10 quadruplets). Tout comme pour la modélisation de la dispersion expérimentale sur les observations, il s'agit d'extraire de l'information à partir de mesures extraites non plus d'expériences réelles réalisées par nos soins mais de valeurs mesurées par d'autres auteurs et publiées dans la littérature. Néanmoins, la méthodologie reste similaire. Les figures 4.22, 4.23 et 4.24 représentent les matrices empiriques d'autocorrélation calculées à partir des 10 fonctions ϕ respectivement pour $p = 1$, $p = 2$ et $p = 3$ charges. La discrétisation de l'espace des diamètres est réalisée par 500 points répartis en échelle logarithmique entre 10^{-9} m et 10^{-6} m, d'où la dimension des matrices d'autocorrélation $\Gamma_{1,\phi}$, $\Gamma_{2,\phi}$ et $\Gamma_{3,\phi} \in R^{500 \times 500}$, correspondant respectivement à $p = 1$, $p = 2$ et $p = 3$ charges. Plus le nombre de charges augmentent, plus l'apparition de particules multi-chargées est retardée réduisant par la même occasion la dimension d'intérêt de la matrice d'autocorrélation. La discrétisation étant fine par rapport à la discrétisation d'origine (moins de 200 points d'évaluations de la fonction), une interpolation sera effectuée à partir des réalisations de chacun des processus gaussiens modélisés pour chaque charge. La figure 4.25 présente quelques réalisations des processus gaussiens respectivement pour $p = 1$, $p = 2$ et $p = 3$ charges ainsi que la région de confiance à 95% calculée à partir de 1000 trajectoires du processus pour chaque charge.

Modélisation de l'incertitude sur la fonction de transfert du DMA par mélange de modèles

Plusieurs modèles existent pour la modélisation de la fonction de transfert du DMA Ω . Pour simplifier, on peut dire qu'il existe un modèle qui ne prend pas en compte la diffusion des particules à l'intérieur de la colonne du DMA et un modèle qui prend cet aspect en considération. Ainsi, lorsque l'aérosol étudié présente une population de particules dont le diamètre est inférieur à une centaine de nanomètres, alors le premier modèle est choisi, et au contraire, pour des diamètres supérieurs à ce seuil de quelques centaines de nanomètres, le second modèle est sélectionné. Dans le premier chapitre de cette thèse, certaines références validant le modèle diffusif de *Stolzenburg* sont citées. Pour autant, la validation numérique se focalise sur des particules dont le diamètre est inférieur à 100 nm en général. Ne connaissant pas la granulométrie en nombre de l'aérosol à caractériser lors d'une expérience, il est important de statuer sur le modèle le plus adapté à utiliser. La modélisation arbitraire proposée dans

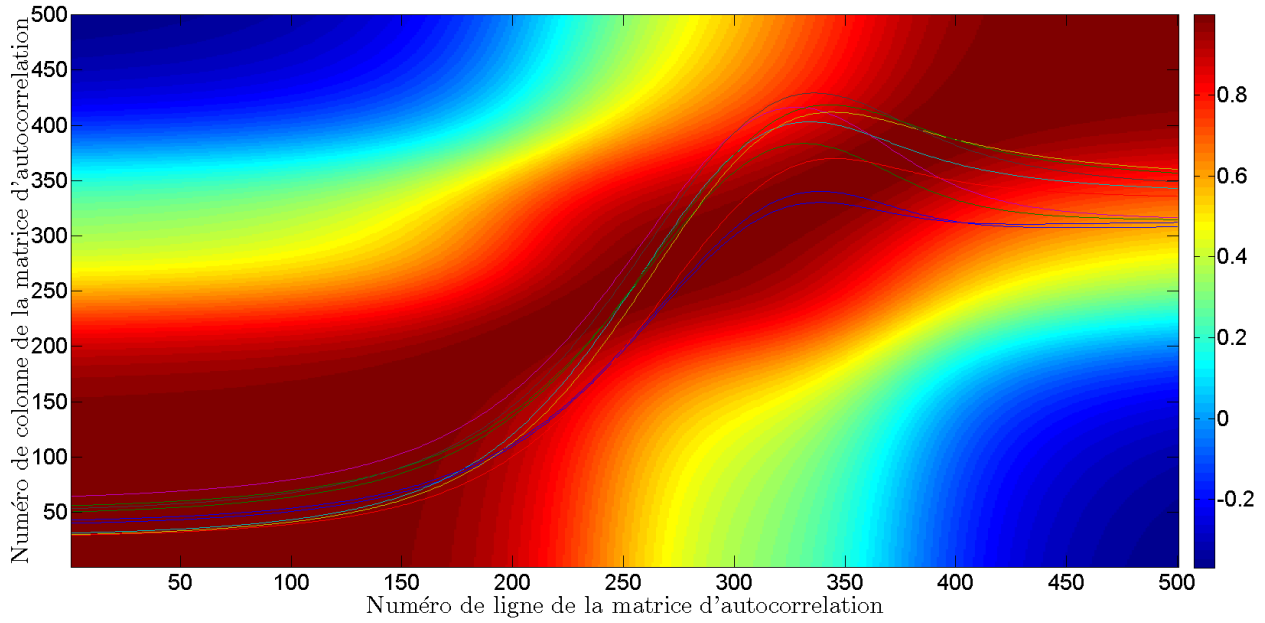


Figure 4.22: Visualisation de la valeur des coefficients de la matrice d'autocorrelation $\Gamma_{1,\phi}$ calculée à partir des 10 valeurs du quadruplet pour $p = 1$ charge à partir desquelles plusieurs ϕ sont calculées et présentées en premier plan.

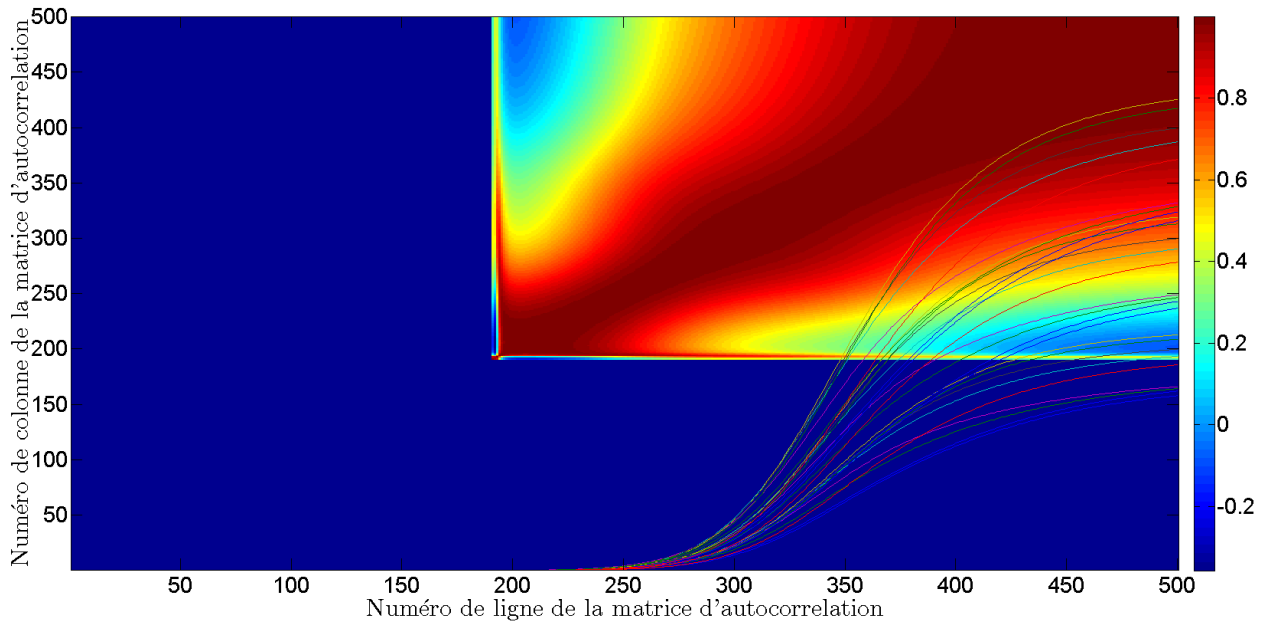


Figure 4.23: Visualisation de la valeur des coefficients de la matrice d'autocorrelation $\Gamma_{2,\phi}$ calculée à partir des 10 valeurs du quadruplet pour $p = 2$ charges à partir desquelles plusieurs ϕ sont calculées et présentées en premier plan.

ce cas repose alors sur un *a priori* fort qui peut se traduire de la manière suivante :

- pour des diamètres inférieurs à 100 nm, le modèle de *Stolzenburg* est choisi, on parle de régime où le transport diffusif prédomine,
- pour des diamètres supérieurs à 400 nm, la diffusion est négligeable et par conséquent le modèle

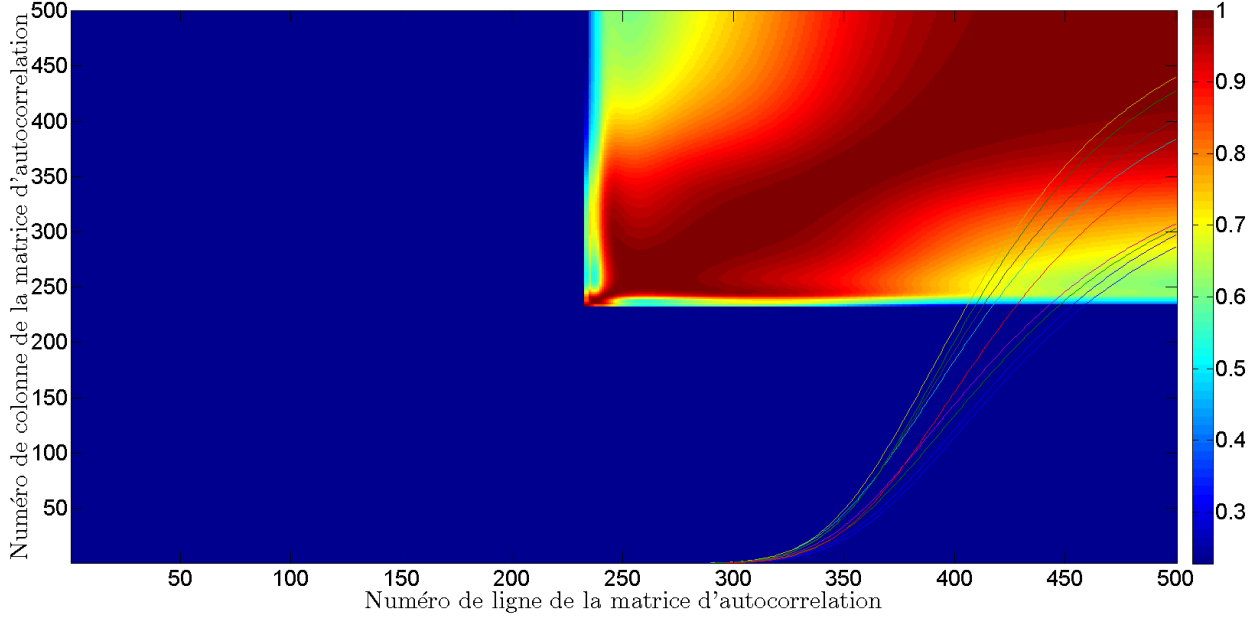


Figure 4.24: Visualisation de la valeur des coefficients de la matrice d'autocorrelation $\Gamma_{3,\phi}$ calculée à partir des 10 valeurs du quadruplet pour $p = 3$ charges à partir desquelles plusieurs ϕ sont calculées et présentées en premier plan.

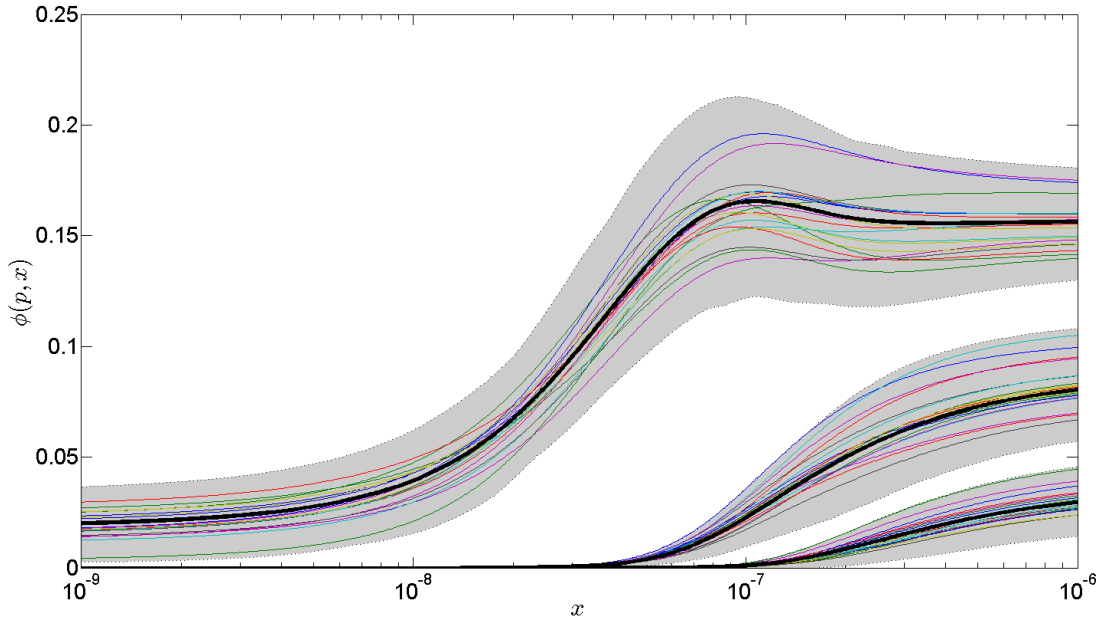


Figure 4.25: Quelques trajectoires des processus gaussiens modélisant l'incertitude sur la fonction ϕ pour $p = 1, 2, 3$ en fonction du diamètre des particules x et leurs régions de confiance à 95% associées (zones en gris clair). La fonction dite moyenne pour chaque charge est représentée en trait noir, elle correspond à la fonction obtenue en considérant le quadruplet de *Reischl*.

de *Wang et Flagan* est préféré, on parle cette fois de régime où le transport convectif prédomine,

- pour les particules dont le diamètre $x \in [100 \text{ nm}, 400 \text{ nm}]$, alors un mélange de modèles est réalisé par l'intermédiaire d'une fonction de mélange, on parle de régime intermédiaire où à la fois le transport diffusif et convectif interviennent.

Le régime intermédiaire est modélisé de façon arbitraire. La discussion avec les experts dans le domaine d'application a permis de statuer la valeur des bornes de ce régime. La modélisation proposée consiste à tirer aléatoirement un diamètre x^* dans la gamme $[100 \text{ nm}, 400 \text{ nm}]$ et à partir de ce diamètre, de construire une fonction poids $g(x)$ linéaire qui va représenter la transition entre les modèles. Soient Ω_D et Ω_{ND} respectivement les fonctions de transfert avec et sans prise en compte de la diffusion, alors la fonction de transfert qui prendra en compte l'incertitude associée au choix du modèle sera la fonction Ω telle que :

$$\Omega = g(x)\Omega_{ND} + (1 - g(x))\Omega_D. \quad (4.28)$$

Pour $x^* \sim \mathcal{U}[100 \times 10^{-9}, 400 \times 10^{-9}]$, la fonction g est définie comme suit :

$$g(x) = \begin{cases} 0 & , \quad x \leq x^*, \\ 1 & , \quad x \geq x^* + 100 \times 10^{-9}, \\ a_1 x + a_2 & , \quad x \in [x^*, x^* + 100 \times 10^{-9}]. \end{cases} \quad (4.29)$$

NB : les valeurs de a_1 et a_2 sont calculées de manière à garantir la continuité de g .

La figure 4.26 illustre la fonction de mélange g pour 100 tirages de x^* .

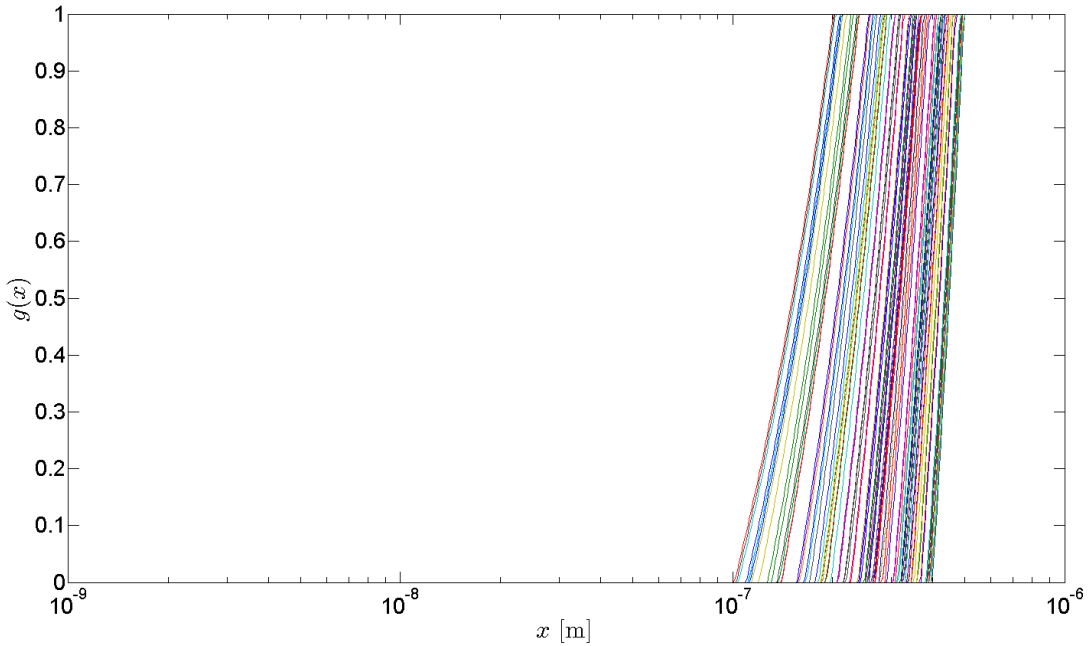


Figure 4.26: Fonction de mélange g pour 100 tirages de x^* .

4.2.6 Échantillonnage de Monte-Carlo pour la propagation des sources

La méthodologie complète de propagation des incertitudes repose sur un échantillonnage par Monte-Carlo. En effet, dans le cas d'un aérosol stable, la dispersion expérimentale (instabilité de la génération, variabilité paramétrique partielle et bruit de mesure) est modélisée par un processus gaussien non stationnaire autocorrélé, ainsi, un grand nombre d'observations simulées peuvent être générées.

Pour un aérosol instable, la dispersion expérimentale (bruit de mesure seulement) est aussi modélisée par un processus gaussien non stationnaire mais non autocorrélé cette fois.

La méconnaissance est quant-à-elle modélisée à travers la création de matrices aléatoires pour l'inversion. Soit N_q le nombre d'observations que l'on souhaite simuler, N_q matrices aléatoires sont alors créées,

conduisant à N_q estimations de \hat{f} . A noter que la méconnaissance est modélisée de façon identique pour les 2 mesurandes. La figure 4.27 présente un schéma bloc simplifié de la démarche de propagation proposée reprenant graphiquement les propos tenus dans les 2 paragraphes précédents.

Ces estimations vont alors permettre de définir la valeur moyenne estimée de la fonction \hat{f} et aussi de fournir à l'expérimentateur un niveau de confiance sur l'estimation présentée, ce qui est tout à fait nouveau pour cette mesure. De plus, certains critères statistiques vont pouvoir être délivrés en sortie de l'inversion des N_q observations, on peut penser à la médiane, le mode et leurs incertitudes associées. Pour être complet, il faudrait pouvoir caractériser chaque point d'estimation x de la fonction \hat{f} par une incertitude bidimensionnelle (diamètre et concentration).

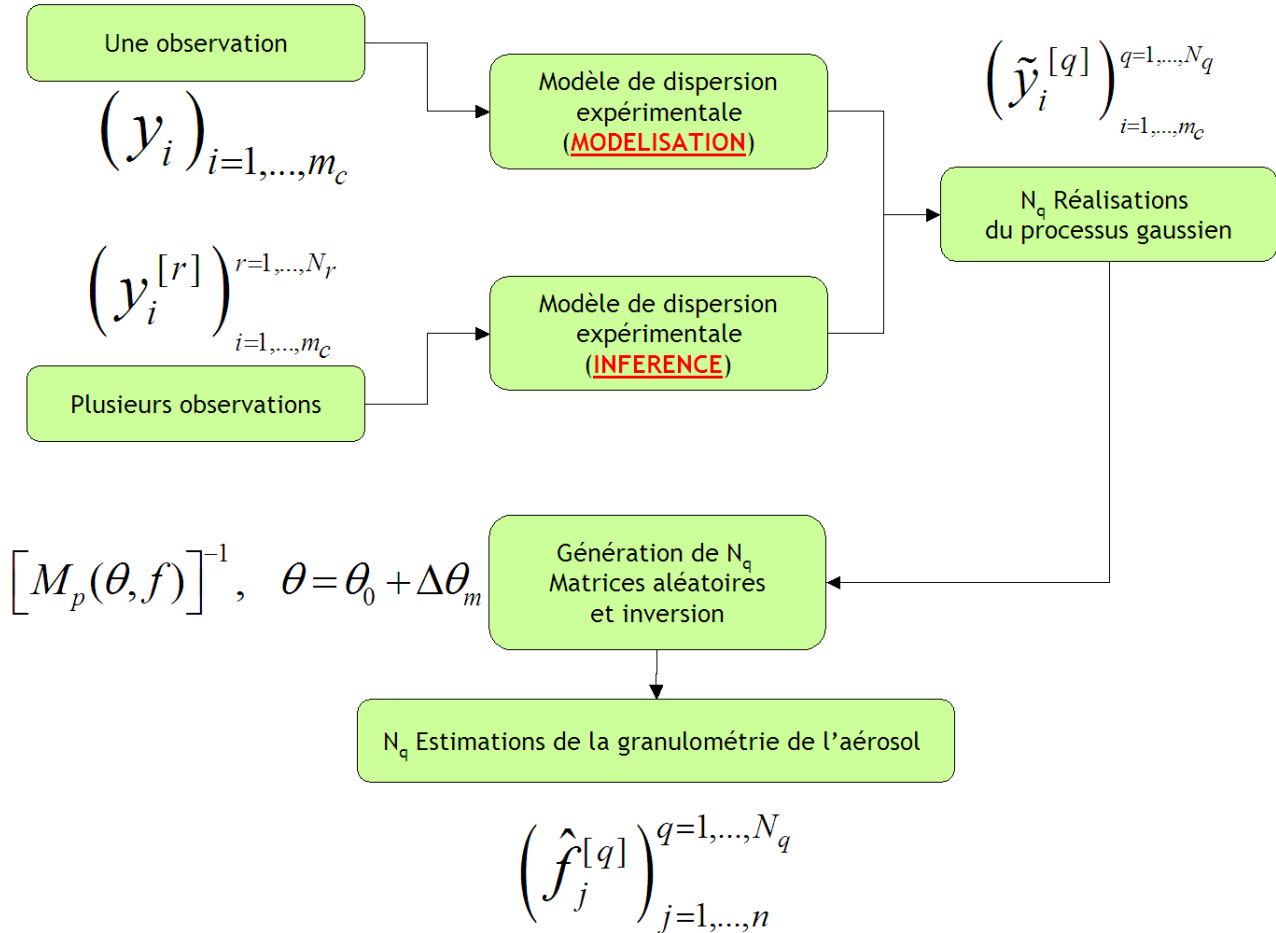


Figure 4.27: Schéma bloc simplifié de l'échantillonnage par Monte-Carlo pour la propagation de l'incertitude.

4.2.7 Validation numérique de la propagation des incertitudes

Nous avons vu précédemment en section 4.1.3 les limitations de la méthode classique de propagation des sources d'incertitude à travers l'algorithme d'inversion pour caractériser le biais et la variance de l'estimateur \hat{f} (nécessité de connaître f pour estimer la variance de \hat{f} et absence d'un aérosol de référence pour évaluer le biais). Nous avons alors proposé une alternative en section 4.1.4 afin d'estimer la variance de l'estimateur \hat{f} et de caractériser le biais par la création d'un modèle d'inversion aléatoire. Pour justifier de la véracité d'une telle démarche, une validation numérique est mise en œuvre en simulant une distribution granulométrique. Connaissant f , il sera alors possible de déterminer si le transfert de la méconnaissance au niveau de l'inversion (alternative proposée) affecte l'estimateur \hat{f} de la même manière que lorsque celle-ci est présente lors de la génération des observations.

Pour expliciter la procédure mise en œuvre, les notations définies en section 4.1.3 sont conservées. Soit

$\Delta\theta_d^{[l,s]}$ le $l^{\text{ème}}$ tirage de chaque élément dans le groupe de la dispersion expérimentale associé au $s^{\text{ème}}$ tirage de chaque élément appartenant au groupe de la méconnaissance, noté $\Delta\theta_m^{[s]}$. Les observations simulées, notées $y^{[l,s]}$ sont obtenues, pour un s donné, de la façon suivante :

$$y^{[l,s]} = K_{[\theta_0 + \Delta\theta_d^{[l,s]} + \Delta\theta_m^{[s]}]} f + \epsilon, \quad l = 1, \dots, N_l, \quad (4.30)$$

où N_l représente le nombre de tirages maximum pour le groupe de la dispersion expérimentale. Partant de ce jeu de N_l vecteurs d'observations, après inversion à modèle fixé K_{θ_0} , l'estimateur moyen sur le nombre de tirages N_l , noté $\hat{f}_1^{[s]}$, est calculé. La procédure est alors répétée pour s allant de 1 à N_s pour finalement obtenir un ensemble d'estimateurs moyens $\left(\hat{f}_1^{[s]}\right)_{s=1, \dots, N_s}$. La dispersion de cet ensemble représente alors la méconnaissance telle qu'elle est obtenue par la méthode dite classique de propagation.

Pour comparer avec l'alternative proposée, il s'agit de simuler N_l observations pour un s donné (le $s^{\text{ème}}$ tirage choisi est alors le même que celui pour la première méthode et sera noté \tilde{s}) comme suit :

$$y^{[l,\tilde{s}]} = K_{[\theta_0 + \Delta\theta_d^{[l,\tilde{s}]}]} f + \epsilon, \quad l = 1, \dots, N_l, \quad (4.31)$$

et de générer N_l matrices d'inversion aléatoires $\left(K_{[\theta_0 + \Delta\theta_m^{[s]}]}\right)_{s=1, \dots, N_l}$ pour calculer N_s estimateurs, notés cette fois $\left(\hat{f}_2^{[l,s]}\right)_{l=1, \dots, N_l}$. On considère ici que $N_s = N_l$ et donc pour N_l observations simulées par l'équation (4.31), on aura N_l estimateurs après l'inversion. Les estimateurs $\left(\hat{f}_1^{[s]}\right)_{s=1, \dots, N_s}$ et $\left(\hat{f}_2^{[l,\tilde{s}]}\right)_{l=1, \dots, N_l}$ sont enfin comparées pour vérifier que la dispersion du premier ensemble d'estimateurs est similaire à celle obtenue pour le second ensemble autour de l'estimateur de référence $\hat{f}_1^{[\tilde{s}]}$. La figure 4.28 présente les deux ensembles d'estimateurs $\left(\hat{f}_1^{[s]}\right)_{s=1, \dots, N_s}$ et $\left(\hat{f}_2^{[l,\tilde{s}]}\right)_{l=1, \dots, N_l}$ ainsi que l'estimateur $\hat{f}_1^{[\tilde{s}]}$ pour $N_s = N_l = 100$. Les estimateurs par la méthode classique et par l'alternative proposée semblent similaires au vue de la représentation graphique de la figure 4.28. La figure 4.29 montre les variances empiriques calculées pour chaque ensemble d'estimateurs et révèle que la variance de l'estimateur proposé est globalement supérieure à la variance de l'estimateur classique sur l'ensemble de la gamme de mesure. Le seul bémol intervient en queue de distribution correspondant à de faibles comptages au niveau des observations ($x \geq 400$ nm). Néanmoins, l'intérêt premier est d'assurer que la variance de l'estimateur proposé soit comparable à la variance de l'estimateur classique pour les zones de concentrations élevées ce que confirme le cas test présenté. Cette phase préliminaire de validation nous conforte dans l'idée que faire porter la méconnaissance sur les observations ou à travers la définition d'une matrice d'inversion aléatoire conduit à une variance de l'estimateur final quasi-similaire à la variance de l'estimateur classique pour un biais simulé et donc connu.

Pour un biais inconnu, comme c'est le cas en présence de données réelles, celui-ci pourra donc être caractérisé par l'intermédiaire de l'approche développée.

Cette validation numérique est effectuée sur une distribution originale f , une prochaine étape qui ne sera pas présentée dans ce manuscrit serait la validation sur un ensemble de fonctions tests afin d'étendre la validité de la démarche pour tout type de granulométries en nombre.

4.2.8 Mise en œuvre sur des données réelles

La méthodologie générale de propagation des incertitudes à travers l'algorithme d'inversion étant complètement définie, nous mettons en application la démarche complète pour 2 mesures effectuées au LNE lors de la thèse.

Les signaux mesurés pour les 2 essais considérés ont été présentés en section 4.2.4 pour illustrer la modélisation de la dispersion expérimentale. Une solution liquide contenant du DEHP (huile) et une suspension colloïdale de SiO_2 sont mises en suspension par atomisation, représentant respectivement

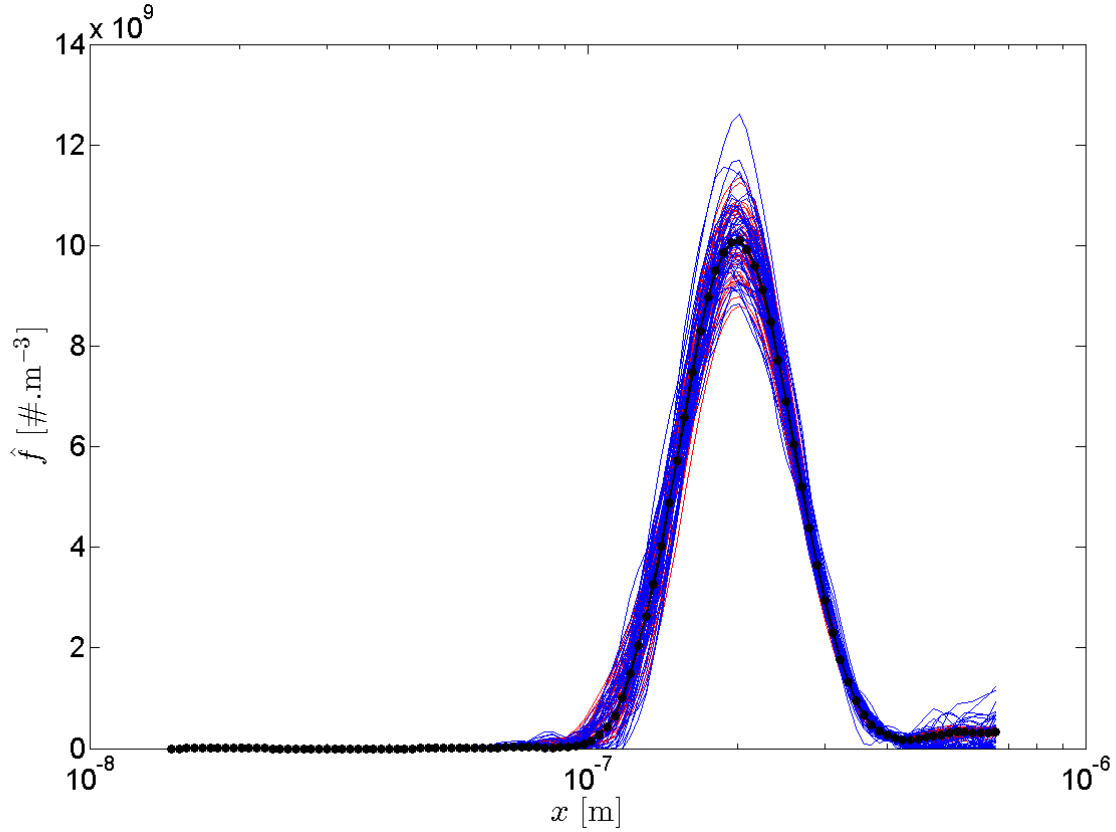


Figure 4.28: Estimateurs $\left(\hat{f}_1^{[s]}\right)_{s=1,\dots,N_s}$ (trait plein rouge) et $\left(\hat{f}_2^{[l,\tilde{s}]}\right)_{l=1,\dots,N_l}$ (trait plein bleu) et l'estimateur $\hat{f}_1^{[s]}$ (trait noir avec des points noirs).

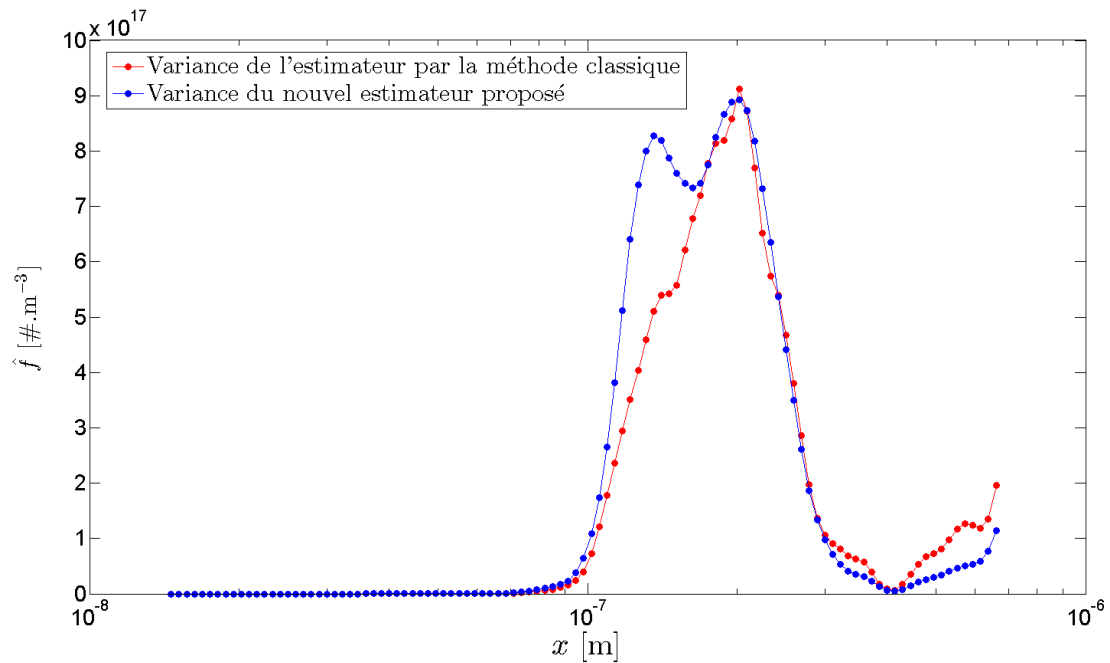


Figure 4.29: Variance empirique des estimateurs $\left(\hat{f}_1^{[s]}\right)_{s=1,\dots,N_s}$ et $\left(\hat{f}_2^{[l,\tilde{s}]}\right)_{l=1,\dots,N_l}$.

le 1^{er} et le 2^{ème} essai. Le nombre d'acquisitions est alors respectivement de 18 et 40. Le tableau 4.6 présente les valeurs nominales des paramètres pour chacun des essais. Pour les 2 exemples présentés dans cette section, plusieurs réplicats de mesure sont disponibles. Nous ne traiterons pas du cas sans

Paramètre	Unité	Valeur Essai 1	Valeur Essai 2
Q_{sh}	[lpm]	3.0	3.0
Q_a	[lpm]	0.3	0.3
Q_{cpc}	[lpm]	0.3	0.3
t_s	[s]	120	120
L	[m]	0.44369	0.44369
r_1	[m]	0.00937	0.00937
r_2	[m]	0.01961	0.01961
U_{min}	[V]	10	10
U_{max}	[V]	9591	9565
T	[K]	296.15	295.85
P	[K]	101.3	100.6

Tableau 4.6: Valeurs nominales des paramètres pour la mesure des 2 aérosols considérés. Les valeurs présentées sont fournies par le logiciel AIM pour chaque essai (tous les paramètres mis à disposition de l'expérimentateur pour chaque essai ne sont pas listés dans le tableau).

réplicats.

Pour chaque essai, un tirage de Monte-Carlo va correspondre à une estimation de la granulométrie en nombre. 2 configurations pour la reconstruction de f sont présentées pour chaque essai. La première consiste à propager toutes les sources d'incertitude (dispersion expérimentale et méconnaissance) et la seconde à ne propager que la dispersion expérimentale. Ainsi, il sera possible de définir la source ayant le plus d'influence sur l'estimation finale. La représentation de l'incertitude choisie est la région de confiance à 95% associée à l'estimation moyenne sur l'ensemble des tirages de Monte-Carlo. La figure 4.30 montre les trajectoires de Monte-Carlo estimées avec et sans prise en compte de la méconnaissance pour chaque essai. La figure 4.31 présente l'estimation moyenne et la région de confiance à 95% estimées à partir des trajectoires de Monte-Carlo pour chaque configuration et chaque essai. Ces résultats mettent en évidence la prédominance de la méconnaissance quant-à la variance de l'estimateur final. Cela traduit simplement le fait que pour un essai effectué dans des conditions de laboratoire contrôlées (comme c'est le cas pour les essais présentés), les acquisitions sont très répétables et que la source principale d'incertitude provient de la modélisation physique du processus de mesure.

Ne pouvant évaluer le biais, la démarche qui consisterait à estimer la granulométrie à modèle fixé sous-estimerait grandement la variance de l'estimateur final comme le suggèrent ces résultats. Il est donc très important de prendre en compte la méconnaissance afin d'évaluer l'incertitude associée à l'estimation de la granulométrie en nombre de l'aérosol étudié. Les trajectoires de Monte-Carlo présentent aussi l'avantage de pouvoir fournir aux utilisateurs du SMPS des représentants statistiques de la granulométrie en nombre estimée et leurs incertitudes associées. On pense par exemple au diamètre médian, moyen, au mode de la distribution granulométrique, etc.

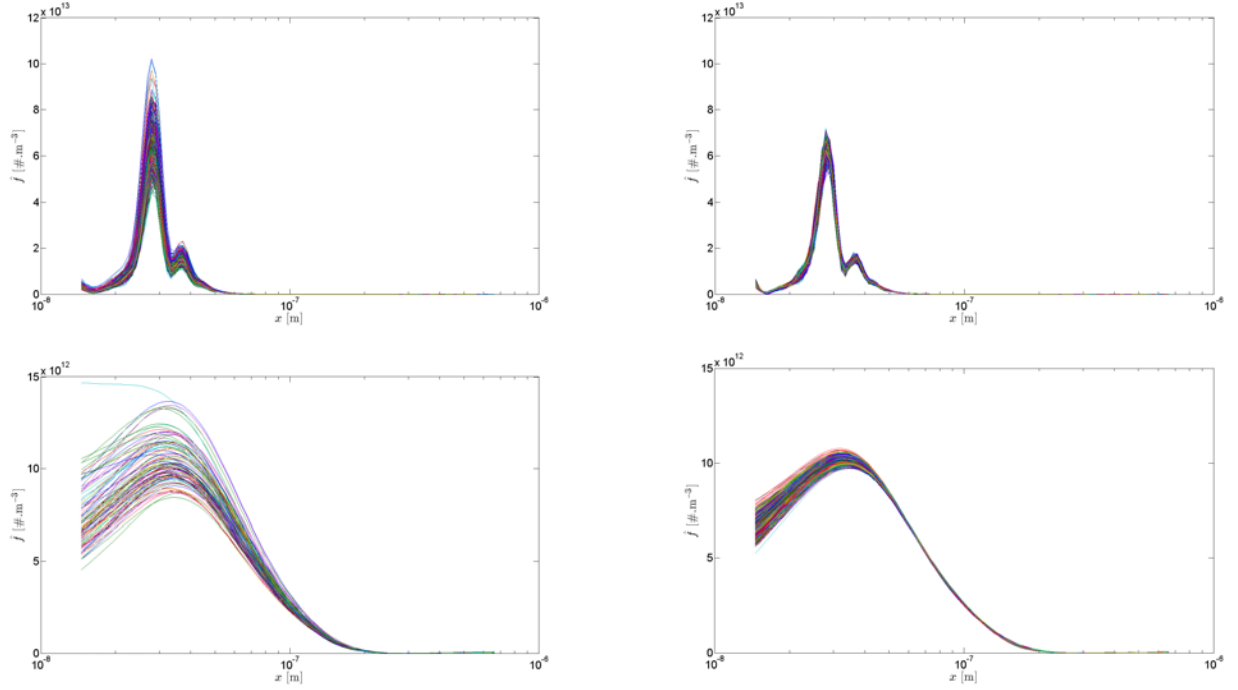


Figure 4.30: 1000 Trajectories de Monte-Carlo pour le 1^{er} essai (figures du haut) et pour le 2^{ème} essai (figures du bas) avec prise en compte de la méconnaissance (figures de gauche) et sans prise en compte de la méconnaissance (figures de droite).

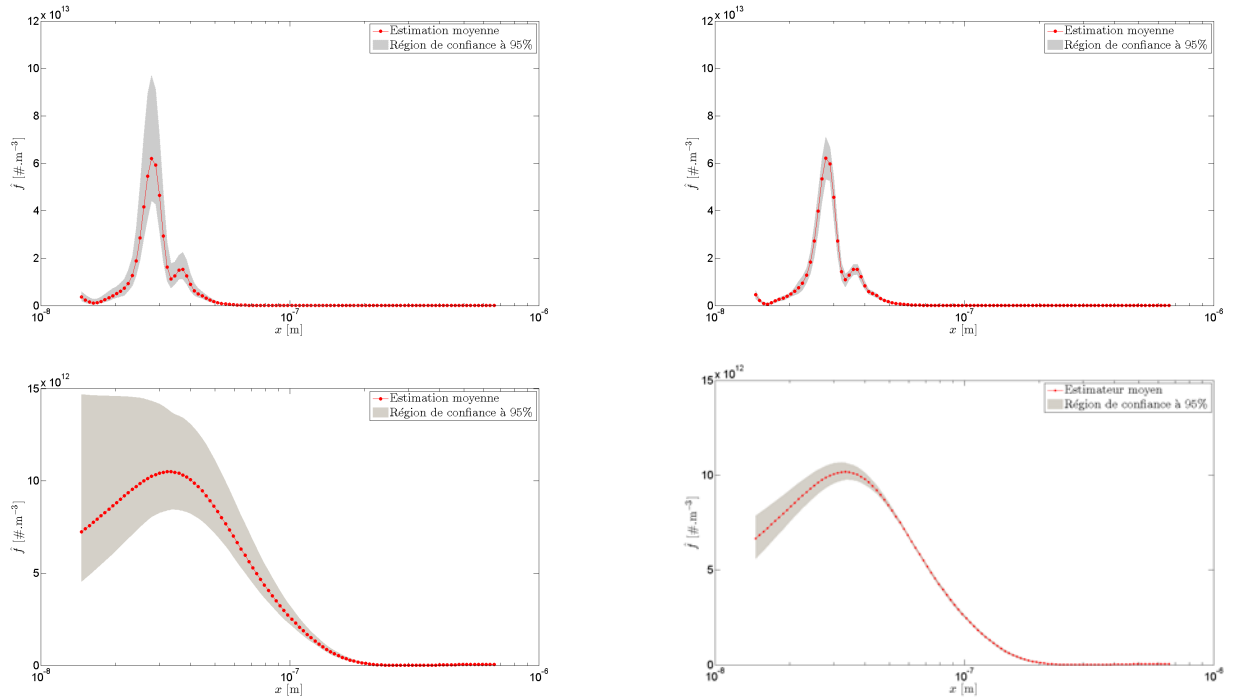


Figure 4.31: Estimateur moyen sur l'ensemble des simulations de Monte-Carlo et la région de confiance associée pour le 1^{er} essai (figures du haut) et pour le 2^{ème} essai (figures du bas) avec prise en compte de la méconnaissance (figures de gauche) et sans prise en compte de la méconnaissance (figures de droite).

Chapitre 5

Conclusion générale

Au cours de cette thèse, nous nous sommes intéressés à l'évaluation de l'incertitude associée à l'estimation de la granulométrie en nombre d'un aérosol par technique SMPS. La granulométrie en nombre exprime la concentration en nombre de particules en fonction du diamètre des particules, c'est par conséquent l'incertitude associée à une fonction que nous avons été amenés à caractériser. Le problème de l'estimation de la granulométrie en nombre est un problème inverse, en effet, celle-ci n'est pas mesurée directement mais estimée à partir des comptages de particules en fonction du temps et du modèle physique exprimant la relation entre les comptages mesurés et la granulométrie à estimer.

Face à ce problème d'inversion sous incertitudes, le fil conducteur des travaux entrepris s'est articulé autour de 3 axes majeurs que sont :

- La définition du modèle physique le plus adapté
- Le développement d'une procédure d'inversion spécifique à l'estimation de la granulométrie en nombre
- La proposition d'une méthodologie de propagation des sources d'incertitude

L'analyse bibliographique relative à la modélisation physique du processus de mesure fait l'objet du premier chapitre de cette thèse. Cette analyse a permis de mettre en évidence l'existence d'un modèle général commun défini par une équation intégrale de *Fredholm* de première espèce pour exprimer les observations en fonction de la granulométrie en nombre de l'aérosol à étudier. La définition des fonctions noyaux de cet opérateur intégral représentant la physique sous-jacente du système s'est avérée quant-à elle plus ardue. En effet, cette tâche a consisté entre autres à définir la théorie ou valeur du paramètre faisant consensus parmi un ensemble de théories concurrentes (pour la modélisation d'un même phénomène physique) ou parmi un ensemble de valeurs mesurées et publiées pour le même paramètre.

Il faut aussi souligner que les choix de modélisation que nous présentons dans le premier chapitre de cette thèse ont été conditionnés à la fois par les contraintes liées au temps de calcul (contrainte inévitable pour un problème d'évaluation de l'incertitude en grande dimension) et par l'inversion de données qui permet l'estimation de la granulométrie en nombre. Pour ces raisons, parmi les sous-modèles retenus, certains ne sont ni les plus récents, ni les plus complexes.

Le deuxième chapitre de cette thèse se focalise sur la définition d'un nouveau critère pour l'estimation de la granulométrie en nombre connaissant le modèle défini dans le premier chapitre et les comptages de l'instrument en fonction du temps. Une description détaillée des méthodes classiques de régularisation est présentée ainsi qu'un panel des méthodes courantes pour l'estimation du paramètre de régularisation. Les limitations de la régularisation classique apparaissent lorsque la solution à estimer présente

des variations à la fois lentes et rapides. Nous mettons en évidence ces limitations sur des données simulées à partir d'une granulométrie en nombre théorique présentant ce type de variations.

La contribution majeure de cette thèse réside dans le développement d'une nouvelle procédure d'inversion. La proposition faite est de coupler régularisation et décomposition sur une base d'ondelettes pour la définition du nouveau critère. La décomposition multi-échelles s'accompagne alors de la nécessité d'estimer plusieurs paramètres de régularisation (1 par échelle). Or, à notre connaissance à ce jour, aucune méthode robuste ne permet l'estimation de ces multiples paramètres. Pour cette raison, le premier angle d'attaque envisagé a été de définir l'ondelette assurant la meilleure estimation et d'évaluer l'influence du niveau de décomposition sur l'estimateur de la granulométrie en nombre. L'ondelette et le niveau de décomposition sont sélectionnés à partir d'une comparaison numérique sur des données simulées. Une *Symlet* d'ordre 5 et 1 seul niveau de décomposition sont recommandés.

L'heuristique présentée dans la seconde partie du deuxième chapitre offre 3 contributions. Tout d'abord, elle va permettre de détecter les régions d'apparition des variations rapides (ou pics de concentration) à partir des coefficients du premier niveau de détail. Les deux dernières contributions de cette heuristique sont liées. Ayant détecté les régions correspondantes aux variations rapides, l'attention est alors portée sur les zones où apparaissent les variations lentes. L'utilisateur est alors mis à contribution pour préciser le nombre d'épisodes de variations lentes (I') et les diamètres $(\mu'_j)_{j=1,\dots,I'}$ auxquels ils interviennent. Une surface de réponse obtenue par simulation numérique permet ensuite d'estimer la valeur des paramètres de la régularisation respectivement pour les coefficients d'approximation et de détail. Les valeurs de chacun des paramètres sont alors constantes pour l'ensemble des observations. Enfin, pour assurer une pénalisation plus faible des régions à variations rapides (trop pénalisée dans le cadre de la régularisation classique), nous proposons que le paramètre de régularisation associé au premier niveau de détail prenne la forme d'une fonction poids où le poids associé à ces régions est faible (la pénalisation associée aux régions à variations lentes est donnée par la valeur estimée via la surface de réponse). L'avantage d'une telle proposition est que d'une part elle va permettre l'estimation de granulométries en nombre plus variées et, d'autre part, elle contourne le problème lié à l'estimation de multiples paramètres de régularisation pour chaque observation en fixant les valeurs des poids de la régularisation pour un ensemble d'observations.

Dans le dernier chapitre de cette thèse, l'effort se porte sur la propagation des incertitudes à travers l'algorithme d'inversion. L'objectif est alors de caractériser à la fois la variance et le biais de l'estimateur \hat{f} . Ne disposant d'aucun aérosol de référence, l'évaluation du biais n'est pas possible, autrement, celui-ci serait corrigé. Nous mettons en avant dans la première partie de ce chapitre l'incompatibilité de la méthode classique de propagation des incertitudes avec le problème posé. Cette méthode consiste à faire porter toute l'incertitude sur les observations et de procéder à une inversion à modèle fixé. Dans ce cas précis, l'expression de la variance de l'estimateur requiert la connaissance de la granulométrie en nombre f que l'on souhaite estimer. Nous suggérons alors de décomposer les sources d'incertitude en 2 groupes que sont la dispersion expérimentale et la méconnaissance. Les éléments du premier groupe sont alors associés aux observations alors que les éléments appartenant au second vont porter sur l'inversion.

Contrairement à l'approche classique, le modèle d'inversion ne sera pas fixé mais aléatoire. La méthodologie développée distingue deux scénarios. Le premier scénario correspond à la présence de plusieurs réplicats de mesure en entrée de la procédure d'inversion alors que le second traite du cas d'une seule acquisition à disposition. En présence de réplicats de mesure l'inférence statistique prime pour la modélisation de la dispersion expérimentale alors que, le cas échéant, une modélisation principalement basée sur la théorie des compteurs est choisie.

La modélisation de la méconnaissance est traitée de façon identique pour le scénario avec ou sans réplicats de mesure. Cette étape de modélisation présentée à la fin du troisième chapitre utilise principalement l'information mise à disposition par les chercheurs dans le domaine des aérosols. En effet,

les paramètres et autres fonctions méconnus du modèle sont modélisés respectivement par différents représentants statistiques : variables et processus aléatoires ou encore paramètre de mélange. Les moyennes de ces représentants sont fournies par les valeurs de consensus définies dans le premier chapitre et leurs dispersions sont caractérisées par l'intermédiaire de l'information extraite lors de l'analyse bibliographique.

La propagation des sources d'incertitude est finalement réalisée par simulations de Monte-Carlo. Distinguant chacun des scénarios, les signaux réels obtenus par l'expérimentateur sont alors remplacés par des signaux simulés de moyenne et variance identique aux signaux mesurés. L'avantage de cette approche est alors de pouvoir générer un grand nombre de signaux simulés par rapport au nombre réduit d'acquisitions réelles possibles. Ensuite, pour chaque observation simulée, un modèle d'inversion aléatoire est généré par tirage aléatoire de chacun des éléments du groupe de la méconnaissance ce qui conduit à un estimateur de la granulométrie en nombre. L'opération est alors réalisée pour l'ensemble des observations simulées ce qui permet une évaluation de la moyenne et de la variance de l'estimateur \hat{f} de f . Une région de confiance à un niveau défini par l'utilisateur est calculée à partir des simulations de Monte-Carlo et fournit une évaluation de l'incertitude de mesure associée à la mesure effectuée.

Notre contribution dans ce dernier chapitre repose sur une modélisation fine de chacune des sources d'incertitude associées au problème et sur la proposition d'une méthode de propagation qui peut s'étendre à d'autres problèmes d'inversion sous incertitudes. La validation numérique de l'alternative décrite pour la propagation des sources nous conforte dans l'idée de cette possible généralisation à d'autres problèmes du même type.

Les grands axes stipulés au lancement de ces travaux de thèse ont été traités et pour chacun d'entre eux, une proposition a été présentée. L'automatisation de l'évaluation de l'incertitude associée à l'estimation de la granulométrie en nombre d'un aérosol par le SMPS est à présent possible et d'ors-et-déjà mise en application au sein des laboratoires du LNE et de l'IRSN. Ce travail mené en étroite collaboration entre les 3 acteurs du projet a permis de répondre à un besoin réel du milieu industriel. Il constitue une avancée significative dans la caractérisation des aérosols et ouvrira la voie comme nous l'espérons à d'autres propositions pour faire évoluer cette évaluation de l'incertitude.

Chapitre 6

Perspectives

Commençons par aborder les perspectives concernant le processus de mesure.

La finalité étant l'évaluation de l'incertitude sur la granulométrie en nombre de l'aérosol étudié, il est important de garantir la stabilité de la concentration en particules en entrée du SMPS. En laboratoire, l'aérosolisation est couramment effectuée par atomisation à partir d'une suspension liquide. Ainsi, bien que les billes de latex soient des nanoparticules de référence en solution, aucun aérosol de référence n'existe à ce jour du fait du processus de génération. En présence de cet aérosol de référence, l'évaluation du biais sur l'estimateur de la granulométrie en nombre serait possible et une correction pourrait alors être appliquée. Nous comptons sur les avancées dans le domaine de l'instrumentation pour disposer d'une telle référence.

Citons désormais les perspectives d'amélioration relatives aux 3 axes de développement présentés dans la section précédente.

Le modèle physique peut bien évidemment être amélioré, prenant en considération des effets jusqu'alors négligés. On pense par exemple à la prise en compte de la distribution des temps de transport des particules du DMA vers le CNC, sachant que, dans le modèle proposé, un scalaire sensé représenter la valeur moyenne de ce temps de transport est considéré. On peut par la même occasion citer les distributions des mobilités ioniques qui devraient intégrer le modèle et remplacer leurs valeurs scalaires.

La procédure d'inversion proposée permet la détection des régions présentant des variations rapides et associe alors au premier niveau de détail une fonction poids pour laquelle ces zones sont moins régularisées afin de conserver la structure du signal à reconstruire. Une constante multiplicative arbitraire par rapport à la valeur de la pénalisation fournie par la surface de réponse pour les zones à variations lentes est choisie. Une amélioration serait alors d'estimer la valeur de cette constante qui assurerait une pénalisation adaptée à ces régions.

Ensuite, dans la perspective d'une automatisation complète de la procédure d'inversion, le recours à l'utilisateur pour définir les différentes régions présentant des variations lentes devra être remplacé par une procédure de détection automatique.

Un autre apport à l'approche développée serait la création d'une méthode d'estimation des paramètres de régularisation associés respectivement aux niveaux de détail et d'approximation (une estimation pour chaque observation au lieu d'une estimation pour l'ensemble des observations).

Enfin, si la méthode présente un gain par rapport à l'approche de régularisation classique, la prochaine étape est de confronter cette méthode à celles présentes dans la littérature.

La méthodologie de propagation de l'incertitude est basée sur un échantillonnage par Monte-Carlo. Cette méthode nécessite un nombre conséquent d'appels à la procédure d'inversion. Or, pour chaque

appel à l'inversion, une matrice aléatoire est créée et son remplissage est coûteux en terme de temps de calcul. Il serait intéressant de définir une nouvelle méthode d'échantillonnage qui permettrait de garantir, moyennant un nombre d'appels limités à l'algorithme d'inversion, une évaluation fidèle de la moyenne et de la variance de l'estimateur final de la granulométrie en nombre.

Une autre amélioration concerne la présentation des résultats à l'expérimentateur. Le calcul d'une région de confiance autour d'une valeur centrale est une représentation graphique intéressante, cependant, une nouveauté serait la représentation de l'incertitude par rectangles de confiance pour chaque point de reconstruction de l'estimateur.

Pour finir, intéressons nous aux perspectives d'utilisation de la méthode complète d'inversion sous incertitudes dans le domaine d'application.

La démarche complète d'évaluation de l'incertitude de mesure décrite dans ce manuscrit a été implémentée sous MATLAB. Ce problème d'inversion sous incertitudes se retrouve dans de nombreuses mesures en aérosol. Le développement d'un logiciel d'inversion de données pour de multiples instruments comme cela a été fait par *Seinfeld* (code MICRON) ou encore par *Twomey* (code TWOM) dans le cadre des mesures en statique pourrait alors être étendu aux mesures en dynamique.

Les travaux entrepris ont aussi pour but d'obtenir une caractérisation fidèle de la granulométrie en nombre en sortie du SMPS pour des problématiques liées à la normalisation européenne qui évolue concernant la qualité de l'air et les effets des aérosols ultra-fins.

Annexe A

Calcul de la valeur du champ électrique dans le cas non stationnaire

La figure A.1 présente un schéma simplifié de la colonne DMA. Les équations de *Maxwell-Ampère* et

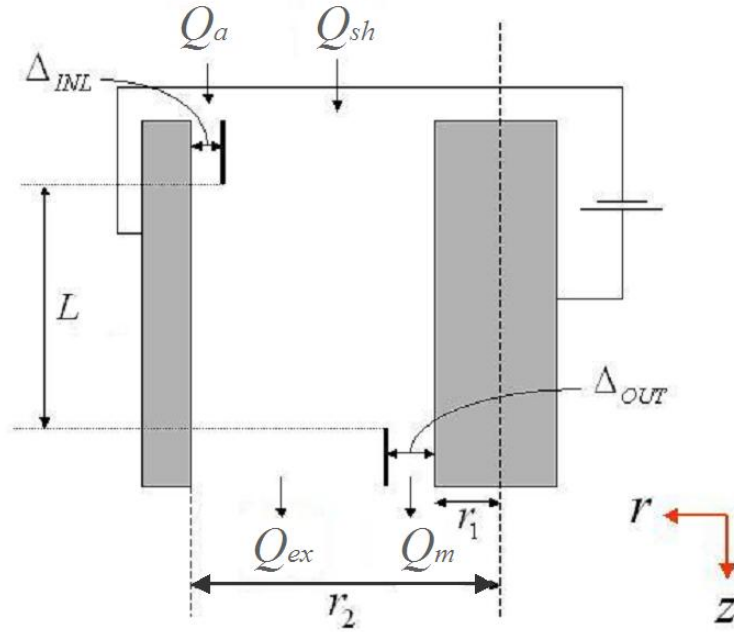


Figure A.1: Schéma simplifié de la colonne DMA

Maxwell-Faraday régissent le comportement du champ électrique et du champ magnétique. Partant des équations des ondes électromagnétiques dans le vide, où les deux champs sont alors couplés, on a les relations suivantes :

$$\begin{cases} \Delta \vec{E} - \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \\ \Delta \vec{B} - \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \vec{B}}{\partial t^2} = 0 \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

, où \vec{B} est le vecteur champ magnétique, \vec{E} est le vecteur champ électrique, μ_0 est la perméabilité magnétique du vide et ϵ_0 est la constante diélectrique.

A partir de l'équation de *Maxwell-flux* qui dit que :

$$\text{div} \vec{B} = 0 \quad (\text{A.2})$$

, on introduit alors le couple (\vec{A}, u) , où \vec{A} est le potentiel vecteur et u est le potentiel électrique scalaire, solution de :

$$\begin{cases} \vec{B} &= r\vec{\text{rot}}\vec{A} \\ \vec{E} &= -\vec{\text{grad}}(u) - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

Le report de ces deux grandeurs dans l'équation de Maxwell-Gauss :

$$\text{div}\vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (\text{A.4})$$

et l'équation de *Maxwell-Ampère* :

$$r\vec{\text{rot}}\vec{B} = \mu_0\vec{j} + \mu_0\epsilon_0\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{A.5})$$

amène à résoudre :

$$\begin{cases} \Delta V + \frac{\partial}{\partial t}(\text{div}\vec{A}) &= -\frac{\rho}{\epsilon_0} \\ \Delta\vec{A} - \mu_0\epsilon_0\frac{\partial^2 \vec{A}}{\partial t^2} - \vec{\text{grad}}\left(\mu_0\epsilon_0\frac{\partial u}{\partial t} + \text{div}\vec{A}\right) &= -\mu_0\vec{j} \end{cases} \quad (\text{A.6})$$

Le couple (\vec{A}, u) , solution de (A.3) n'étant pas unique, un choix dit de jauge est réalisé. Cela consiste à ajouter une contrainte supplémentaire. Le choix de jauge le plus couramment utilisé est celui dit de *Lorentz* qui consiste à poser :

$$\mu_0\epsilon_0\frac{\partial u}{\partial t} + \text{div}\vec{A} = 0 \quad (\text{A.7})$$

ce qui ramène (A.6) à :

$$\begin{cases} \Delta u - \mu_0\epsilon_0\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + \frac{\rho}{\epsilon_0} &= 0 \\ \Delta\vec{A} - \mu_0\epsilon_0\frac{\partial^2 \vec{A}}{\partial t^2} + \mu_0\vec{j} &= 0 \end{cases} \quad (\text{A.8})$$

De plus, le système est quasi-stationnaire, ce qui signifie que le temps de propagation des ondes électromagnétiques est négligeable devant la période du signal. En effet, soit Υ le nombre sans dimension tel que : $\Upsilon = \frac{L}{c\tau_c}$, où L est la distance entre la source (ici l'électrode centrale du DMA) et le récepteur (la particule entrante dans la colonne), c est la vitesse de l'onde considérée, et τ_c est le temps caractéristique d'évolution de ρ et \vec{j} . Le cas d'étude est tel que $\Upsilon \ll 1$ du fait de la géométrie du DMA (la largeur de la colonne est de l'ordre du cm).

La quasi-stationnarité du système implique donc la nullité des termes de propagation, autrement dit $\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = 0$. De plus, les distributions de charge et de courant ne dépendent pas du temps, par conséquent, les équations du champ électrique et magnétique sont découplées. Le champ magnétique est par conséquent indépendant du temps (donc $r\vec{\text{rot}}\vec{E} = 0$) d'où la nouvelle expression du champ électrique E :

$$\vec{E} = -\vec{\text{grad}}(u) \quad (\text{A.9})$$

Dans le cadre du calcul de la mobilité électrique, seul l'expression du champ électrique nous intéresse, le système à résoudre se résume donc à :

$$\begin{cases} \Delta u &= 0 \\ \vec{E} &= -\vec{\text{grad}}(u) \end{cases} \quad (\text{A.10})$$

Le DMA étant constitué de deux électrodes cylindriques, le passage en coordonnées cylindriques pour la résolution de (A.10) est réalisé. Le potentiel u s'exprime en terme de position à un temps donné t : $u = u(r, z, \theta, t)$. La symétrie de révolution de l'instrument implique

$$\frac{\partial}{\partial \theta} = \frac{\partial}{\partial z} = 0 \quad (\text{A.11})$$

Par conséquent, le potentiel u s'exprime en fonction de sa position radiale à un temps t donné : $u = u(r, t)$.

Dès lors, il reste à déterminer les conditions limites pour pouvoir résoudre. Les conditions aux limites suivantes sont posées :

$$\begin{cases} u(r_1, t) = U(t) \\ u(r_2, t) = 0 \end{cases} \quad (\text{A.12})$$

En effet, la tension U est définie comme une différence de potentiel entre les deux électrodes. Le système à résoudre s'écrit alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u(r, t)}{\partial r} \right) = 0 \\ u(r_1, t) = U(t) \\ u(r_2, t) = 0 \end{cases} \quad (\text{A.13})$$

La solution de (A.13) est :

$$u(r, t) = \beta + \alpha \ln(r) \quad (\text{A.14})$$

En prenant en compte les conditions aux limites, on détermine α et β tels que :

$$u(r, t) = \frac{U(t) \ln(r_2)}{\ln(\frac{r_2}{r_1})} - \frac{U(t) \ln(r)}{\ln(\frac{r_2}{r_1})} \quad (\text{A.15})$$

, d'où l'expression du champ électrique :

$$E(r, t) = -\frac{U(t)}{\ln(\frac{r_2}{r_1})r} \quad (\text{A.16})$$

Annexe B

Calcul de la fonction de transfert de *Stolzenburg*

Partant de l'équation traduisant l'évolution du mouvement d'une particule soumise au mouvement brownien à travers un champ électrique décrit par :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} + D \frac{\partial^2 c}{\partial r^2} - u_z(r) \frac{\partial c}{\partial z} - \frac{\partial c}{\partial r} \left(\frac{Z_d U}{r \ln \left(\frac{r_2}{r_1} \right)} - \frac{D}{r} \right), \quad (\text{B.1})$$

il s'agit pour résoudre de poser les conditions aux limites. *Stolzenburg* considère les conditions suivantes :

1. concentration nulle sur les parois
2. gradient de concentration nul dans la direction axiale au niveau de la zone de collecte des particules
3. profil de concentration uniforme à l'entrée de la colonne du classificateur DMA

La dernière condition traduit l'hypothèse d'une évolution abrupte du champ électrique en entrée de colonne et ainsi cela se traduit mathématiquement par la condition :

$$c(z, r, t = 0) = \begin{cases} 0 & , \text{si } r < r_b \\ 1 & , \text{si } r \geq r_b. \end{cases} \quad (\text{B.2})$$

Considérant que la concentration de particules à l'entrée de la colonne est constante au cours du temps, le terme $\frac{\partial c}{\partial t}$ s'annule et la fonction de transfert ω est évaluée comme le ratio entre le flux total de particules arrivant dans la zone d'extraction sur le flux total entrant dans la colonne :

$$\omega = \frac{\int_{r_1}^{r_a} c(z = L, r, t = t_{fin}) 2\pi u_z(r) dr}{\int_{r_b}^{r_2} c(z = 0, r, t = 0) 2\pi u_z(r) dr}. \quad (\text{B.3})$$

Sachant l'équation (B.2),

$$\int_{r_b}^{r_2} c(z = 0, r, t = 0) 2\pi u_z(r) dr = \int_{r_b}^{r_2} 2\pi u_z(r) dr, \quad (\text{B.4})$$

et en remplaçant $u_z(r)$ dans l'équation (B.4) par sa valeur en écoulement piston ou écoulement laminaire complètement développé, on obtient respectivement I_p et I_f :

$$I_p = \frac{Q_{sh} + Q_a(r_2^2 - r_b^2)}{2\pi(r_2^2 - r_1^2)}, \quad (\text{B.5})$$

$$I_f = \frac{A_1}{4}(r_2^4 - r_b^4) + \frac{A_2}{2}(r_2^2 \ln(r_2) - r_b^2 \ln(r_b)) - \frac{A_2}{4}(r_2^2 - r_b^2) + \frac{A_3}{2}(r_2^2 - r_b^2). \quad (\text{B.6})$$

L'expression de la fonction de transfert dépend encore des positions radiales r_a et r_b gouvernées par les équations suivantes :

$$Q_m = \int_{r_1}^{r_a} 2\pi u_z(r) dr, \quad (\text{B.7})$$

$$Q_a = \int_{r_b}^{r_2} 2\pi u_z(r) dr, \quad (\text{B.8})$$

Encore une fois, en remplaçant $u_z(r)$ par sa valeur en écoulement piston ou écoulement laminaire complètement développé, on obtient la valeur des couples $(r_{a,p}, r_{b,p})$ et $(r_{a,f}, r_{b,f})$ comme :

$$\begin{aligned} r_{a,p} &= \sqrt{\frac{Q_m}{Q_{ex} + Q_m}(r_2^2 - r_1^2) + r_1^2}, \\ r_{b,p} &= \sqrt{\frac{Q_a}{Q_a + Q_{sh}}(r_2^2 - r_1^2) + r_2^2}, \\ \frac{A_1}{4}r_{a,f}^4 + \frac{A_2}{2}r_{a,f}^2 \ln(r_{a,f}) + \left(\frac{A_2}{2} - \frac{A_2}{4}\right)r_{a,f}^2 &= \frac{Q_m}{2\pi} + \frac{A_1}{4}r_1^4 + \frac{A_2}{2}r_1^2 \ln(r_1) + \left(\frac{A_2}{2} - \frac{A_2}{4}\right)r_1^2, \\ \frac{A_1}{4}r_{b,f}^4 + \frac{A_2}{2}r_{b,f}^2 \ln(r_{b,f}) + \left(\frac{A_2}{2} - \frac{A_2}{4}\right)r_{b,f}^2 &= -\frac{Q_a}{2\pi} \frac{A_1}{4}r_2^4 + \frac{A_2}{2}r_2^2 \ln(r_2) + \left(\frac{A_2}{2} - \frac{A_2}{4}\right)r_2^2, \end{aligned}$$

sachant que le couple $(r_{a,f}, r_{b,f})$ est obtenu par approximation numérique.

Références bibliographiques

- [Abr, 1997] (1997). *Ondelettes et turbulence*.
- [Cli, 2009] (2009). Atmospheric aerosol properties and climate impacts. Technical report, U.S. Climate Change Science Program.
- [Agarwal and Fingerson, 1979] Agarwal, J. K. and Fingerson, L. M. (1979). Real-time aerodynamic particle size measurement with a laser velocimeter. *TSI Quarterly*, 1.
- [Agarwal and Sem, 1980] Agarwal, J. K. and Sem, G. J. (1980). Continuous flow, single-particle-counting condensation nucleus counter. *Journal of Aerosol Science*, 11(4):343–357.
- [Ankilov et al., 2002] Ankilov, A., Baklanov, A., Colhoun, M., Enderle, K. H., Gras, J., Julanov, Y., Kaller, D., Lindner, A., Lushnikov, A. A., Mavliev, R., McGovern, F., O'Connor, T. C., Podzimek, J., Preining, O., Reischl, G. P., Rudolf, R., Sem, G. J., Szymanski, W. W., Vrtala, A. E., Wagner, P. E., Winklmayr, W., and Zagaynov, V. (2002). Particle size dependent response of aerosol counters. *Journal of Atmospheric Research*, 62(3):209–237.
- [Barry, 1973] Barry, J. M. (1973). Splins and smooth: two fortran smoothing routines. Technical report, Australian Nuclear Science and Technology Organisation.
- [Bauer and Lukas, 2011] Bauer, F. and Lukas, M. A. (2011). Comparing parameter choice methods for regularization of ill-posed problems. *Mathematics and Computers in Simulation*, 81(9):1795–1841.
- [Belge et al., 2002] Belge, M., Kilmer, M. E., and Miller, E. L. (2002). Efficient determination of multiple regularization parameters in a generalized l-curve framework. *Inverse Problems*, 18(4):1161–1183.
- [Bemer et al., 2011] Bemer, D., Chazelet, S., Masson, A., Subra, I., and Cavadig-Rodriguez, M.-C. (2011). Charge électrique des aérosols - mesure et influence de ce paramètre. Technical report, INRS, Département ingénierie des procédés.
- [Binnig and Rohrer, 1986] Binnig, G. and Rohrer, H. (1986). Scanning tunneling microscopy. *IBM Journal of Research and Development*, 30(4):355.
- [Birmili et al., 1997] Birmili, W., Stratmann, F., Wiedensohler, A., Covert, D., Russell, L. M., and Berg, O. (1997). Determination of differential mobility analyzer transfer functions using identical instruments in series. *Aerosol Science and Technology*, 27(2):215–223.
- [Boulaud and Diouri, 1988] Boulaud, D. and Diouri, M. (1988). A new inertial and diffusional device (sdi 2000). *Journal of Aerosol and Science*, 19:927–930.
- [Box et al., 1978] Box, G. E. P., Hunter, W. G., and Hunter, J. S. (1978). *An Introduction to Design, Data Analysis, and Model Building*.
- [Brasseur et al., 2003] Brasseur, G. P., Prinn, R. G., and Pszenny, A. A. P. (2003). *Atmospheric Chemistry in a Changing World: An Integration and Synthesis of a Decade of Tropospheric Chemistry Research*.
- [Bricard, 1949] Bricard, J. (1949). L'Équilibre ionique de la basse atmosphère. *Journal of Geophysical Research*, 54(1):39–52.

- [Bricard, 1965] Bricard, J. (1965). *Problems of Atmospheric and Space Electricity*.
- [Bro and De Jong, 1997] Bro, R. and De Jong, S. (1997). A fast non-negativity-constrained least squares algorithm. *Journal of Chemometrics*, 11(5):393–401.
- [Brézis, 1983] Brézis, H. (1983). *Analyse fonctionnelle : théorie et applications*.
- [Candes et al., 2008] Candes, E. J., Wakin, M. B., and Boyd, S. (2008). Enhancing sparsity by reweighted ℓ_1 minimization. *Journal of Fourier Analysis and Applications*, 14(5):877–905.
- [Cohen and Ryan, 1995] Cohen, A. and Ryan, R. D. (1995). *Wavelets and Multiscale Signal Processing (Applied Mathematics)*. Chapman and Hall/CRC.
- [Coleman et al., 2006] Coleman, J. N., Khan, U., and Gun'ko, Y. K. (2006). Mechanical reinforcement of polymers using carbon nanotubes. *Advanced Materials*, 18(6):689–706.
- [Collins et al., 2004] Collins, D. R., Cocker, D. R., Flagan, R. C., and Seinfeld, J. H. (2004). The scanning dma transfer function. *Aerosol Science and Technology*, 38(8):833–850.
- [Corless et al., 1993] Corless, R. M., Gonnet, G. H., Hare, D. E. G., and Jeffrey, D. J. (1993). On lambert's w function. Technical report, Department of Computer Science of Waterloo.
- [Daubechies, 1992] Daubechies, I. (1992). *Ten lectures on wavelets*. conference series in applied mathematics. Siam edition.
- [Daubechies, 1994a] Daubechies, I. (1994a). *Ten lectures on wavelets*, volume 61 of *CBMS*, pages 258–261.
- [Daubechies, 1994b] Daubechies, I. (1994b). *Ten lectures on wavelets*, volume 61 of *CBMS*, pages 198–202.
- [D'Errico, 2006] D'Errico, J. (2006). Surface fitting using gridfit. MATLAB Central File Exchange.
- [Faraday, 1857] Faraday, M. (1857). The bakerian lecture: Experimental relations of gold (and other metals) to light. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 147:145–181.
- [Feynman, 1960] Feynman, R. P. (1960). There's plenty of room at the bottom. *Engineering and Science*, 23(5):22–36.
- [Fiacco and McCormick, 1990] Fiacco, A. V. and McCormick, G. P. (1990). *Nonlinear Programming: Sequential Unconstrained Minimization Techniques*.
- [Fisher, 1926] Fisher, R. A. (1926). The arrangement of field experiments. *Journal of the Ministry of Agriculture of Great Britain*, 33:503–513.
- [Fissan et al., 1998] Fissan, H., Pocher, A., Neumann, S., Boulaud, D., and Pourprix, M. (1998). Analytical and empirical transfer functions of a simplified spectrometre de mobilite electrique circulaire (smec) for nano particles. *Journal of Aerosol Science*, 29(3):289–293.
- [Fissan et al., 1983] Fissan, H. J., Helsper, C., and Thielen, H. J. (1983). Determination of particle size distributions by means of an electrostatic classifier. *Journal of Aerosol Science*, 14(3):354–357.
- [Flagan, 1999] Flagan, R. C. (1999). On differential mobility analyzer resolution. aerosol. *Aerosol Science and Technology*, 30(6):556–570.
- [Fuchs, 1963] Fuchs, N. A. (1963). On the stationary charge distribution of aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere. *Geofisica Pura e Applicata*, 56(1):185–193.
- [Fuchs and Sutugin, 1970] Fuchs, N. A. and Sutugin, G. A. (1970). *Highly Dispersed Aerosols*. Ann Arbor Science.
- [Geim and MacDonald, 2007] Geim, A. K. and MacDonald, A. H. (2007). Graphene: Exploring Carbon Flatland. *Physics Today*, 60(8):35–41.

- [Gensdarmes, 2008] Gensdarmes, F. (2008). La métrologie des nanoparticules sous forme d'aérosol. Technical report, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire.
- [Goldman et al., 1985] Goldman, M., Goldman, A., and Sigmond, R. S. (1985). The corona discharge, its properties and specific uses. *Pure and Appl. Chem*, 57(9):1353–1362.
- [Gunn, 1954] Gunn, R. (1954). Diffusion charging of atmospheric droplets by ions, and the resulting combination coefficients. *Journal of Meteorology*, 11(5):339–347.
- [Hadamard, 1902] Hadamard, J. (1902). Sur les problèmes aux dérivées partielles et leur signification physique. *Princeton University Bulletin*, 13(49-52):28.
- [Hagwood et al., 1999] Hagwood, C., Sivathanu, Y., and Mulholland, G. (1999). The dma transfer function with brownian motion a trajectory/monte-carlo approach. *Aerosol Science and Technology*, 30(1):40–61.
- [Hansen, 2008] Hansen (2008). www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/52-regtools.
- [Hansen and O'Leary, 1993] Hansen, C. and O'Leary, D. P. (1993). The use of the l-curve in the regularization of discrete ill posed problems. *SIAM Journal on Scientific Computing*, 14(6):1487–1503.
- [Hansen, 1992] Hansen, P. C. (1992). Analysis of discrete ill-posed problems by means of the l-curve. *SIAM Review*, 34(4):561–580.
- [Hansen et al., 2007] Hansen, P. C., Jensen, T. K., and Rodriguez, G. (2007). An adaptive pruning algorithm for the discrete l-curve criterion. *Journal of Computational and Applied Mathematics*, 198(2):483–492.
- [Heisenberg, 1927] Heisenberg, W. (1927). über den anschaulichen inhalt der quantentheoretischen kinematik und mechanik. *Zeitschrift für Physik*, 43(3-4):172–198.
- [Hoppel and Frick, 1986] Hoppel, W. A. and Frick, G. M. (1986). Ion-aerosol attachment coefficients and the steady-state charge distribution on aerosol in a bipolar environment. *Aerosol Science and Technology*, 5(1):1–21.
- [Hussin et al., 1983] Hussin, A., Scheibel, H. G., Becker, K. H., and Porstendörfer, J. (1983). Bipolar diffusion charging of aerosol particles-i: Experimental results within the diameter range 4-30 nm. *Journal of Aerosol Science*, 14(5):671–677.
- [Iijima, 1991] Iijima, S. (1991). Helical microtubules of graphitic carbon. *Nature*, 354(6348):56–58.
- [JCGM, 1995] JCGM (1995). Evaluation of measurement data - guide to the expression of uncertainty in measurement.
- [JCGM, 2008] JCGM (2008). Evaluation of measurement data - supplement 1 to the "guide to the expression of uncertainty in measurement" - propagation of distributions using a monte carlo method.
- [Jiang et al., 2011] Jiang, J., Attoui, M., Heim, M., Brunelli, N. A., McMurry, P. H., Kasper, G., Flagan, R. C., Giapis, K., and Mouret, G. (2011). Transfer functions and penetrations of five differential mobility analyzers for sub-2 nm particle classification. *Aerosol Science and Technology*, 45(4):480–492.
- [Junge, 1955] Junge, C. (1955). The size distribution and aging of natural aerosols as determined from electrical and optical data. *Journal of Meteorology*, 12(1):13–25.
- [Keefe et al., 1959] Keefe, D., Nolan, P. J., and Rich, T. A. (1959). Charge equilibrium in aerosols according to the boltzmann law. *Proceedings of the Royal Irish Academy. Section A: Mathematical and Physical Sciences*, 60:27–45.
- [Keller, 1976] Keller, J. B. (1976). Inverse problems. *The American Mathematical Monthly*, 83(2):107–118.

- [Kern, 2003] Kern, M. (2002-2003). *Problèmes Inverses*. INRIA, Rocquencourt, BP 105, 78153 LE CHESNAY.
- [Kerouanton et al., 1996] Kerouanton, D., Tymen, G., and Boulaud, D. (1996). Small particle diffusion penetration of an annular duct compared to other geometries. *Journal of Aerosol Science*, 27(2):345–349.
- [Keskinen et al., 1992] Keskinen, J., Pietarinen, K., and Lehtimäki, M. (1992). Electrical low pressure impactor. *Journal of Aerosol and Science*, 23(4):353–360.
- [Kim et al., 2005] Kim, J. H., Mulholland, G. W., Kukuck, S. R., and Pui, D. Y. H. (2005). Slip correction measurements of certified psl nanoparticles using a nanometer differential mobility analyser (nano-dma) for knudsen number from 0.5 to 83. *Journal of Research of National Institute of Standards and Technology*, 110(1):31–54.
- [Kinney et al., 1991] Kinney, P. D., Pui, D. Y. H., Mulholland, G. W., and Bryner, N. P. (1991). Use of the electrostatic classification method to size $0.1 \mu\text{m}$ particles – a feasibility study. *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, 96(2).
- [Kleitz and Boulaud,] Kleitz, A. and Boulaud, D. *Granulometrie des Particules en Mouvement et des Aerosols*. Ed. Techniques Ingénieur.
- [Knutson, 1999] Knutson, E. O. (1999). History of diffusion batteries in aerosol measurements. *Aerosol Science and Technology*, 31(2-3):83–128.
- [Knutson and Whitby, 1975a] Knutson, E. O. and Whitby, K. T. (1975a). Accurate measurement of aerosol electric mobility moments. *Journal of Aerosol Science*, 6(6):453–460.
- [Knutson and Whitby, 1975b] Knutson, E. O. and Whitby, K. T. (1975b). Aerosol classification by electric mobility: Apparatus, theory, and applications. *Journal of Aerosol Science*, 6(6):443–451.
- [Kotsen, 1943] Kotsen, L. (1943). On the frequency distribution of the number of discharges counted by a geiger-müller counter in a constant interval. *Physica*, 10(9):749–756.
- [Kousaka and Okuyama, 1985] Kousaka, Y. and Okuyama, K. (1985). Determination of particle size distribution of ultra-fine aerosols using a differential mobility analyser. *Aerosol Science and Technology*, 4(2):209–225.
- [Krawczyk-Stando and Rudnicki, 2007] Krawczyk-Stando, D. and Rudnicki, M. (2007). Regularization parameter selection in discrete ill-posed problems - the use of the u-curve. *International Journal of Applied Mathematics and Computer Science*, 17(2):157–164.
- [Kroto et al., 1985] Kroto, H. W., Heath, J. R., O’Brien, S. C., Curl, R. F., and Smalley, R. E. (1985). C60: Buckminsterfullerene. *Nature*, 318(6042):162–163.
- [Liu and Pui, 1974] Liu, B. Y. H. and Pui, D. Y. H. (1974). A submicron aerosol standard and the primary, absolute calibration of the condensation nuclei counter. *Journal of Colloid Interface Science*, 47(1):155–171.
- [Lukas et al., 2010] Lukas, M. A., De Hoog, F. R., and Anderssen, R. S. (2010). Efficient algorithms for robust generalized cross-validation spline smoothing. *Journal of Computational and Applied Mathematics*, 235(1):102–107.
- [Mallat, 1999] Mallat, S. G. (1999). *A Wavelet Tour of Signal Processing, Second Edition Wavelet Analysis and Its Applications*. Academic Press.
- [Mamakos et al., 2007] Mamakos, A., Ntziachristos, L., and Samaras, Z. (2007). Diffusion broadening of dma transfer functions. numerical validation of stolzenburg model. *Journal of Aerosol Science*, 38(7):747–763.
- [Mamakos et al., 2008] Mamakos, A., Ntziachristos, L., and Samaras, Z. (2008). Differential mobility analyser transfer functions in scanning mode. *Journal of Aerosol Science*, 39(3):227–243.

- [Marlow and Brock, 1975] Marlow, W. H. and Brock, J. R. (1975). Unipolar charging of small aerosol particles. *Journal of Colloid and Interface Science*, 50(1):32–38.
- [Martinsson et al., 2001] Martinsson, B. G., Karlsson, M. N. A., and Frank, G. (2001). Methodology to estimate the transfer function of individual differential mobility analyzers. *Aerosol Science and Technology*, 35(4):815–823.
- [Mertes et al., 1995] Mertes, S., Schröder, F., and Wiedensohler, A. (1995). The particle detection efficiency curve of the tsi- 3010 cpc as a function of the temperature difference between saturator and condenser. *Aerosol Science and Technology*, 23(2):257–261.
- [Montgomery, 1984] Montgomery, D. C. (1984). *Design and Analysis of Experiments*.
- [Morris, 1991] Morris, M. D. (1991). Factorial sampling plans for preliminary computational experiments. *Technometrics*, 33(2):161–174.
- [Natanson, 1960] Natanson, G. L. (1960). On the theory of the charging of a microscopic aerosol particles as a result of capture of gas ions. *Soviet Physics Technical Physics*, 5:538–551.
- [O’Connor et al., 2009] O’Connor, I., Hayden, H., Coleman, J. N., and Gun’ko, Y. K. (2009). High-strength, high-toughness composite fibers by swelling kevlar in nanotube suspensions. *Small*, 5(4):466–469.
- [Otto et al., 1996] Otto, E., Droetboom, M., and Fissan, H. (1996). Transport of unipolarly charged aerosols accelerated by an electric field. *Journal of Aerosol Science*, 27:S195–S196.
- [Phillips, 1962] Phillips, D. (1962). A technique for the numerical solution of certain integral equations of the first kind. *Journal of the Association for Computing Machinery*, 9(1):84–97.
- [Pui, 1976] Pui, D. Y. H. (1976). *Experimental Study of Diffusion Charging of Aerosols*. PhD thesis, Mechanical Engineering Department, University of Minnesota, Minneapolis.
- [Raus, 1984] Raus, T. (1984). On the discrepancy principle for the solution of ill-posed problems. *Acta et Comment. University Tartuensis*, 672:16–26.
- [Reischl et al., 1996] Reischl, G. P., Mäkelä, J. M., Karch, R., and Nucid, J. (1996). Bipolar charging of ultrafine particles in the size range below 10 nm. *Journal of Aerosol Science*, 27(6):931–949.
- [Roco, 2005] Roco, M. C. (2005). Environmentally responsible development of nanotechnology. *Environmental Science and Technology*, 39(5):106–112.
- [Russell et al., 1995] Russell, L. M., Flagan, R. C., and Seinfeld, J. H. (1995). Asymmetric instrument response resulting from mixing effects in accelerated dma-cpc measurements. *Aerosol science and technology*, 23(4):491–509.
- [Sem, 2002] Sem, G. J. (2002). Design and performance characteristics of three continuous-flow condensation particle counters: a summary. *Journal of Atmospheric Research*, 62(3):267–294.
- [Standard, 2008] Standard, I. I. (2008). Nanotechnologies - terminology and definitions for nano-objects - nanoparticle, nanofibre and nanoplate.
- [Standard, 2009] Standard, I. I. (2009). Determination of particle size distribution-differential electrical mobility analysis for aerosol particles.
- [Stolzenburg, 1988] Stolzenburg, M. R. (1988). *An Ultrafine Aerosol Size Distribution Measuring System*. PhD thesis, University of Minnesota, Minneapolis.
- [Sung et al., 2007] Sung, J. C., Pulliam, B. L., and Edwards, D. A. (2007). Nanoparticles for drug delivery to the lungs. *TRENDS in Biotechnology*, 25(12):563–570.
- [Taguchi, 1986] Taguchi, G. (1986). *Introduction to Quality Engineering - Designing Quality Into Products and Processes*.

- [Talukdar and Swihart, 2003] Talukdar, S. S. and Swihart, M. T. (2003). An improved data inversion program for obtaining aerosol size distributions from scanning differential mobility analyzer data. *Aerosol Science and Technology*, 37(2):145–161.
- [Tautenhahn and Hämarik, 1999] Tautenhahn, U. and Hämarik, U. (1999). The use of monotonicity for choosing the regularization parameter in ill-posed problems. *Inverse Problems*, 15(6):1487–1505.
- [Tikhonov and Arsenin, 1977] Tikhonov, A. N. and Arsenin, V. Y. (1977). *Solutions of Ill-Posed Problems*.
- [Tikhonov and Glasko, 1965] Tikhonov, A. N. and Glasko, V. B. (1965). Use of the regularization method in non-linear problems. *USSR Computational Mathematics and Mathematical Physics*, 5(3):93–107.
- [Toumey, 2008] Toumey, C. (2008). Reading feynman into nanotechnology: A text for a new science. *Techné*, 13(3):133–168.
- [Townsend, 1900] Townsend, J. S. (1900). The diffusion of ions into gases. *Philosophical Transactions of the Royal Society*, 193-A:129–158.
- [Vogel, 1986] Vogel, C. R. (1986). Optimal choice of a truncation level for the truncated svd solution of linear first kind integral equations when data are noisy. *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 23(1):109–117.
- [Wahba, 1977] Wahba, G. (1977). Practical approximate solutions to linear operator equations when the data are noisy. *SIAM Journal on Numerical Analysis*, 14(4):651–667.
- [Wang and Flagan, 1990] Wang, S. C. and Flagan, R. C. (1990). Scanning electrical mobility spectrometer. *Aerosol Science and Technology*, 13(2):230–240.
- [Wiedensohler, 1988] Wiedensohler, A. (1988). An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range. *Journal of Aerosol Science*, 19(3):387–389.
- [Wiedensohler et al., 1986] Wiedensohler, A., Lütke-meier, E., Feldpausch, M., and Helsper, C. (1986). Investigation of the bipolar charge distribution at various gas conditions. *Journal of Aerosol Science*, 17(3):413–416.
- [Wright, 1960] Wright, P. G. (1960). On the discontinuity involved in diffusion across an interface. *Discussions of the Faraday Society*, 30:100–112.
- [Wu et al., 2003] Wu, Y. P., Rahm, E., and Holze, R. (2003). Carbone anode materials for lithium ion batteries. *Journal of Power Sources*, 114(2):228–236.
- [Yah et al., 2012] Yah, C. S., Simate, G., and Iyuke, S. E. (2012). Nanoparticles toxicity and their routes of exposures. *Pakistan journal of pharmaceutical sciences*, 25(2):477–491.